

RELAXATION ZWISCHEN DEN HYPERFEINNIVEAUS

DES JODATOMS IM $^2P_{1/2}$ ZUSTAND

DISSERTATION

der Fakultät für Physik

der Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von

Werner Thieme

aus Beilngries

München, den 20. Juni 1981

Relaxation zwischen den Hyperfeinniveaus
des Jodatoms im $^2P_{1/2}$ Zustand

Dissertation der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München

Vorgelegt von Werner Thieme
aus Beilngries

München, den 20. Juni 1981



1. Gutachter: Prof. Dr. H. Walther

2. Gutachter: Prof. Dr. Schrötter

Tag der mündlichen Prüfung: 11.11.1981

ZUSAMMENFASSUNG

Eine vollständige Energieextraktion aus Jodlaserverstärkern wird erschwert durch die Hyperfeinaufspaltung der Laserzustände. Größen, die zur Erhöhung des Extraktionsgrades bekannt sein müssen, sind die Zeiten, in denen die Besetzungen zwischen den Hyperfeinniveaus relaxieren. Die Bestimmung der Zeitkonstanten setzt ein grundlegendes Verständnis der wichtigsten Relaxationsprozesse voraus.

Hyperfeinrelaxation findet statt zwischen den beiden Hyperfeinniveaus des oberen Laserzustands ($5^2P_{1/2}$ -Zustand des Jodatoms) und den vier Hyperfeinniveaus des unteren Laserzustands ($5^2P_{3/2}$ -Zustand). Der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit lag auf der Untersuchung der Relaxation im oberen Laserniveau. Dabei wurde folgende Meßmethode verwendet: Ein starker, kurzer (1 ns) Laserpuls, dessen Wellenlänge mit einer Linie des Hyperfeinspektrums übereinstimmt, schafft ein Ungleichgewicht zwischen den Besetzungen der Hyperfeinniveaus. Die Wiederherstellung des Gleichgewichtszustandes wird mit einer Serie von schwachen Probenpulsen beobachtet. Die Bestimmung der Relaxationszeiten unter verschiedenen Bedingungen gibt Aufschluß über die auftretenden Relaxationsprozesse und die zugehörigen Wirkungsquerschnitte.

Die Relaxation im Jodlaser wird durch Stöße hervorgerufen, im Lasermedium sind typischerweise als Stoßpartner vorhanden: Puffergasatome mit einem Druck von einigen hundert mb, jodhaltige Moleküle mit einem Druck von ca. hundert mb, Molekülradikale und Jodatome mit einem Druck von einigen mb.

Eine signifikante Abhängigkeit der Zeitkonstanten von der Dichte der Jodatome im Grundzustand zeigt, daß der vorherrschende Relaxationsprozeß der resonante Energieübertrag ist. Bei diesem Stoß gibt das erste Atom, das sich anfangs in einem bestimmten Hyperfeinniveau des oberen Laserzu-

stands befindet, seine Anregungsenergie an ein zweites Atom im Grundzustand ($5^2P_{3/2}$) ab. Durch die Energieaufnahme geht dieses in ein beliebiges Hyperfeinniveau des oberen Laserzustand über. Auf diese Weise wird die Besetzung zwischen den Hyperfeinniveaus umverteilt. Aus den Meßergebnissen wurden die Reaktionskonstante $k = (1,01 \pm .25) \times 10^{-9} \text{ m}^3/\text{s}$ und der Wirkungsquerschnitt $\sigma = (3,5 \pm .8) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ bestimmt. Mit diesen Werten erhält man unter typischen Jodlaserbedingungen eine Relaxationszeit in der Größe von 30 ns.

Die Experimente zeigen, daß noch ein weiterer, schwächerer Prozeß zur Relaxation beiträgt. Aufgrund theoretischer Abschätzungen /2/ wird vermutet, daß dieser Beitrag von der Spinaustausch-Wechselwirkung hervorgerufen wird. Bei einem solchen Stoß tauschen zwei angeregte Jodatome Valenzelektronen mit unterschiedlicher Spinorientierung aus. Mit der Neuorientierung der Drehimpulse nach dem Austausch sind Übergänge zwischen den Hyperfeinniveaus verbunden. Aus den experimentellen Daten können die Reaktionskonstante $k = (2,0 \pm 0,6) \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ und der Wirkungsquerschnitt $\sigma = (6 \pm 2) \times 10^{-15} \text{ cm}^2$ abgeschätzt werden. Unter typischen Bedingungen würde die Austauschwechselwirkung allein zu Relaxationszeiten in der Größe von 100 ns führen.

Weiterhin kann aus den Experimenten auf den vorherrschenden Relaxationsprozeß im unteren Laserniveau geschlossen werden. Unter typischen Bedingungen ist die Zeitkonstante kleiner als einige wenige Nanosekunden. Eine Zeitkonstante in dieser Größe tritt nur dann auf, wenn die Relaxation im wesentlichen durch Stöße mit den häufigsten Stoßpartnern erfolgt, also mit Puffergasatomen und Jodidmolekülen. Diese Folgerung steht in Einklang mit Experimenten zum optischen Pumpen /23/.

Die Tatsache, daß die Relaxationsprozesse im oberen und unteren Laserniveau so grundsätzlich verschieden sind, kann mit einer Auswahlregel erklärt werden /12, 13/. Diese Regel besagt, daß bei Atomen mit einem Hüllendrehimpuls $J = 1/2$ - dazu gehört das angeregte Jodatome - die Relaxation durch Stöße mit Edelgasatomen und edelgasähnlichen Molekülen stark eingeschränkt ist.

<u>INHALT</u>	Seite
<u>A. EINLEITUNG</u>	1
1. Zielsetzung	1
2. Grundzüge des Jodlasers	4
<u>B. THEORIE</u>	6
1. Stoßprozesse im Lasermedium	6
2. Elektrostatische Wechselwirkung	7
3. Resonanter Energieübertrag	11
4. Austausch-Wechselwirkung	15
5. Magnetische Wechselwirkung	17
6. Zusammenfassung der theoretischen Ergebnisse	18
<u>C. EXPERIMENT ZUM NACHWEIS DER RELAXATION</u>	20
1. Meßmethode und experimentelle Anordnung	20
2. Betrachtungen zu möglichen Fehlerquellen	23
3. Meßergebnisse und Diskussion	26
<u>D. EXPERIMENTE ZUR UNTERSUCHUNG DER ART DER - RELAXATIONSPROZESSE</u>	34
1. Meßmethode und Aufbau	34
2. Meßergebnisse und Diskussion	36
<u>E. SCHLUSSFOLGERUNGEN</u>	42
1. Die Hyperfeinrelaxation im Jodlaser	42
2. Folgerungen für den Bau großer Jodlaser	44
<u>F. ANHANG I</u>	45
Ein abstimmbarer Jodlaser-Oszillator	45
<u>G. ANHANG II</u>	47
1. Relaxationsverlauf bei inhomogener Verteilung	47
<u>H. LITERATURVERZEICHNIS</u>	51



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41555210_0045

A. EINLEITUNG

1. Zielsetzung

Die zunehmende Beachtung, die der Jodlaser in den letzten Jahren gewonnen hat, ist auf seine Entwicklung zum Hochleistungslaser zurückzuführen. Als solcher wird er heute zum Studium der Licht-Plasma-Wechselwirkung eingesetzt.

Die augenblickliche Weiterentwicklung des Jodlasers konzentriert sich auf die Optimierung des Lasersystems. Voraussetzung hierfür ist, daß das grundlegende Verständnis des Jodlasers verbessert wird. Ein Teilaspekt der diesbezüglichen Forschungsarbeit ist das Kennenlernen der Prozesse, die im Innern des Jodlasermediums ablaufen.

Einige der Prozesse nämlich sind für einen optimalen Betrieb des Jodlasers von unmittelbarer Bedeutung. So haben die Relaxationsprozesse zwischen den Hyperfeinniveaus der Laserzustände direkten Einfluß auf den Wirkungsgrad des Lasers. Trotzdem ist die Relaxation bisher kaum erforscht worden. Diese Arbeit berichtet über die experimentelle Untersuchung der Hyperfeinrelaxation, wobei besonderes Gewicht der Relaxation im oberen Laserzustand zukommt.

Der Jodlaser arbeitet auf dem magnetischen Dipolübergang $5\ ^2P_{1/2} - 5\ ^2P_{3/2}$ des Jodatoms, die emittierte Wellenlänge liegt bei $1.31\ \mu\text{m}$. Durch den Kernspin von $I = 5/2$ spaltet der obere Laserzustand in zwei Hyperfeinniveaus auf mit Gesamtdrehimpulsen von $F = 3$ und $F = 2$. Der untere Laserzustand wird von vier Hyperfeinniveaus gebildet mit Gesamtdrehimpulsen von $F = 4, 3, 2$ und 1 . Entsprechend den Auswahlregeln für magnetische Dipolübergänge $\Delta F = 0, \pm 1$ besteht das Hyperfeinspektrum aus sechs Linien. Die Aufspaltung und das Spektrum, wie sie von Zuev et al./1/ gemessen wurden,

zeigt Abb. 1. Der stärkste Übergang verbindet das Hyperfein-niveau $F = 3$ des oberen Zustands mit dem Niveau $F = 4$ des unteren Zustands. Dieser Übergang wird 3 - 4 Linie genannt.

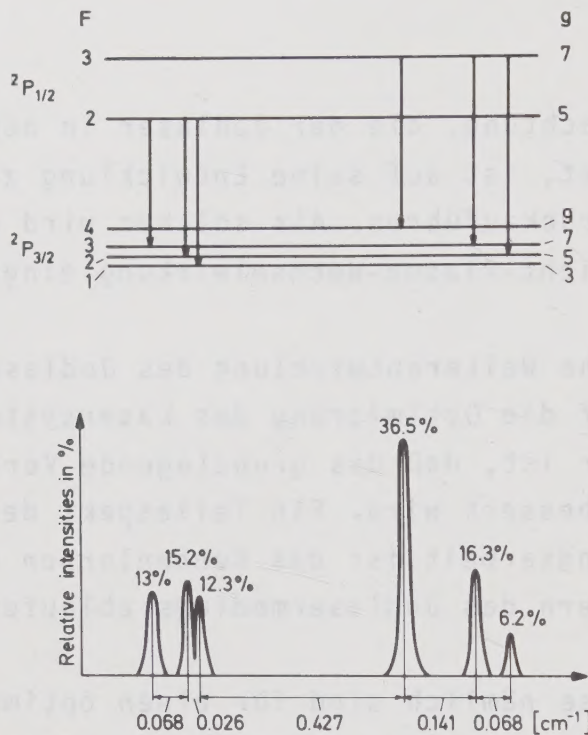


Abb. 1 Hyperfeinaufspaltung und Spektrum des Jodlaserübergangs F ist der Gesamtdrehimpuls. Der Parameter g bezeichnet das statistische Gewicht ($2F + 1$)

Der Pumpvorgang im Jodlaser besetzt beide obere Hyperfein-niveaus, trotzdem emittiert ein Jodlaseroszillator unter Normalbedingungen nur Laserpulse auf der 3 - 4 Linie. Die Ursache hierfür ist in der höheren Verstärkung dieser Linie im Vergleich zu den anderen zu sehen. Durchläuft ein Puls auf dem 3 - 4 Übergang einen Verstärker, so wird nur die auf diesem Übergang gespeicherte Energie extrahiert. Dabei wird die Besetzung des Niveaus $F = 3$ erniedrigt und auf dem unteren Niveau $F = 4$ angehäuft. Die auf den anderen Übergängen gespeicherte Energie ist dem Laserpuls nur über Relaxationsprozesse zugänglich. Die Prozesse pumpen im oberen Laserzustand die Besetzung des entleerten Niveaus $F = 3$ aus dem unberührten "Reservoir" $F = 2$ nach, im unteren Laserzustand vermindern sie die Besetzung des Niveaus $F = 4$ und verteilen sie gleichmäßig auf alle Hyperfeinniveaus. Die Höhe der extrahierten Energie ist abhängig vom Verhältnis der

Pulsdauer zu den Zeitkonstanten der Relaxationsprozesse. Bisher gibt es für die Zeitkonstanten nur eine theoretische Abschätzung von E.A. Yukov /2/. Sie besagt, daß im oberen Laserniveau der dominante Relaxationsprozeß der resonante Energieaustausch zwischen angeregten und Jodatomen im Grundzustand ist. Bei einer typischen Dichte von einigen 10^{16} Jodatomen pro cm^3 sollte man Relaxationszeiten in der Größe von 30 ns erwarten können. Im unteren Laserniveau dagegen sollte die Relaxation hauptsächlich durch Stöße mit den Puffergasatomen des Lasermediums erfolgen. Bei einer Dichte von ca. 10^{19} Atomen pro cm^3 sollte die Relaxationszeit im Subnanosekundenbereich liegen. Zum Vergleich dazu, der Hochleistungsjodlaser arbeitet mit Pulsen, die eine typische Halbwertsbreite von einer Nanosekunde besitzen. Demnach wird im unteren Laserzustand die Gleichgewichtsbesetzung zwischen den Hyperfeinniveaus noch während der Pulsdauer erreicht. Im oberen Laserzustand dagegen ist die Relaxation unbedeutend, aus diesem Grund vermögen ns-Pulse auf der 3 - 4 Linie Energie nur aus dem Niveau $F = 3$ zu entziehen. Die auf dem Niveau $F = 2$ gespeicherte Energie wird nicht angetastet.

Um Methoden auffinden und diskutieren zu können, wie man eine möglichst vollständige Energieextraktion erreicht, ist das Verständnis der Hyperfeinrelaxation notwendig. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Relaxation im oberen Laserzustand unter verschiedenen Bedingungen experimentell untersucht, mit dem Ziel, die auftretenden Relaxationsprozesse und ihre Zeitkonstanten kennenzulernen.

Mit diesen Kenntnissen kann man einmal die bisherigen Vorstellungen und theoretischen Abschätzungen zur Hyperfeinrelaxation überprüfen und, wenn nötig, korrigieren. Zum Zweiten werden die experimentellen Werte benötigt, um vorgeschlagene Methoden zur Steigerung der Energieextraktion auf ihre Wirksamkeit hin untersuchen zu können. Das kann z.B. mit Hilfe eines Computercodes durchgeführt werden, mit dem das Verhalten von Jodlaserverstärkern simuliert werden kann.

2. Grundzüge des Jodlasers

Eine knappe Darstellung der Grundzüge des Jodlasers wird vorangestellt, um das Verständnis von Theorie und Experiment zu erleichtern.

Der wichtigste Bestandteil des Lasermediums ist ein Alkyljodid, wie z. B. HI, CH₃I. Im Rahmen dieser Arbeit ist nur die Verbindung C₃F₇I benutzt worden. Die Alkyljodide zersetzen sich bei Bestrahlung mit UV-Licht (270 nm) in Jodatome und Radikale /3, 4, 5/.

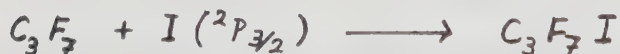


Die Photodissoziation durch Blitzlicht erzeugt zu ca. 90 % angeregte Jodatome im Zustand ²P_{1/2} und nur zu ca. 10 % Jodatome im Grundzustand ²P_{3/2}. Die Besetzungsinversion ermöglicht die Emission von Laserlicht auf dem magnetischen Dipolübergang



mit einer Wellenlänge $\lambda = 1,315 \mu m$ /6/. Die Lebensdauer des angeregten, freien Jodatoms beträgt ca. 130 ms; im Lasermedium dagegen führen chemische Reaktionen, Quenchprozesse und stoßinduzierte Übergänge zu einer Verkürzung auf wenige 100 μs .

Nach der Photodissoziation setzt eine Reihe chemischer Reaktionen ein, wobei die Rekombination



die wichtigste ist, sie bildet wieder das ursprüngliche Jodid. Zugleich räumt diese Reaktion die Besetzung des Grundzustands aus, anhand der zuverlässigsten Literaturwerte erhält man eine Zeitkonstante τ_R von ca. 1 .. 2 μs

unter typischen Laserbedingungen /7/. Geringere Bedeutung haben die schädlichen Dimerisierungsreaktionen



mit einer typischen Zeitkonstante von 15 μ s /7/ und



mit einer Konstanten im Millisekundenbereich.

Bei hohen Pumpleistungen kann die Temperatur so stark ansteigen ($\approx 1200^\circ$ K), daß eine Zersetzung des Jodids auftritt. Das Zumischen eines Puffergases (einige hundert mb) zum Lasermedium vergrößert die Wärmekapazität und reduziert auf diese Weise den Temperaturanstieg. Mögliche Puffergase sind Edelgase, Stickstoff, Kohlendioxyd u.ä. Neben der Reduzierung des Temperaturanstiegs erweist sich ein Puffergas noch aus einem anderen Grund als äußerst günstig. Mit Hilfe der Druckverbreiterung wird es möglich, den Wirkungsquerschnitt für stimulierte Emission den experimentellen Anforderungen optimal anzupassen. In Jodlaserverstärkern wird der Wirkungsquerschnitt i.a. so weit erniedrigt, daß ein Selbstanschwingen durch zu hohe Kleinsignalverstärkung nicht auftritt, das erleichtert den Betrieb von Verstärkern. Der Einfluß des Puffergases auf die Hyperfeinrelaxation gehört zum Problemkreis dieser Arbeit und wird in den folgenden Kapiteln näher behandelt.

Mehr über den Jodlaser kann man in den Referenzen /8, 9/ erfahren.

B. THEORIE

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen dargestellt, die für die Relaxation zwischen Hyperfeinniveaus im Jodlaser wesentlich sind. Besonderes Gewicht finden die Arbeiten dreier Autoren: Erstens die Veröffentlichungen von F. Franz /11/, der grundlegende Vorstellungen zur Hyperfeinrelaxation erarbeitet hat. Zum Zweiten die Veröffentlichungen von A. Gallagher /12/ und F. Franz /13/, die eine Auswahlregel zur Relaxation abgeleitet haben, und schließlich die Veröffentlichung von E.A. Yukov /2/, der sich speziell mit der Relaxation im Jodlaser befaßt hat.

1. Stoßprozesse im Lasermedium

Die Übergänge zwischen den Hyperfeinniveaus werden im Jodlaser durch thermische Stöße verursacht. Im gepumpten Lasermedium sind - wie gezeigt wurde - notwendigerweise verschiedene Teilchensorten als Stoßpartner für das Jodatome vorhanden. Die Tabelle 1 zählt die Teilchen und ihre typischen Dichten auf, dabei und in Zukunft werden Jodatome im oberen Laserniveau mit I^* , Jodatome im unteren Laserniveau mit I bezeichnet. Entsprechend der Vielfalt der Teilchen muß man verschiedene Stoßprozesse unterscheiden. Im einzelnen kann man die Prozesse, an denen I^* teilnimmt, folgendermaßen einteilen:

- elektrostatische Wechselwirkung zwischen I^* und Argonatomen bzw. Jodidmolekülen.
- resonanter Energieübertrag zwischen I^* und I .
- Austauschwechselwirkung zwischen I^* und I^* , bzw. C_3F_7 -
- Magnetische Dipolwechselwirkung zwischen I^* und I bzw. I^* bzw. C_3F_7 -.

Teilchensorte	Dichte /cm ⁻³ /	
	ungesättigt	gesättigt
I*	10 x 10 ¹⁶	5 x 10 ¹⁶
I	1 x 10 ¹⁶	5 x 10 ¹⁶
C ₃ F ₇ -	10 x 10 ¹⁶	
C ₃ F ₇ I	2 x 10 ¹⁸	
Ar	2 x 10 ¹⁹	

Tab. 1 Typische Zusammensetzung des Jodlasermediums in einem Verstärker für zwei Fälle, und zwar vor und nach Verstärkung eines sättigenden Laserpulses

Im folgenden sollen die einzelnen Stoßprozesse genauer behandelt werden. Insbesondere soll der Beitrag zur Relaxation herausgestellt werden.

Weitere Prozesse, wie z.B. Dreierstöße oder spontane Übergänge, werden nicht betrachtet, da sie für die Relaxation von geringer Bedeutung sind.

2. Elektrostatische Wechselwirkung

Bei einem Stoß von I* mit einem Argonatom oder einem Jodidmolekül wirken hauptsächlich elektrostatische Kräfte zwischen den Stoßpartnern. Demgegenüber kann man die magnetischen Kräfte vernachlässigen. Die elektrostatische Wechselwirkung wird im Fall von Edelgaskollisionen durch das van-der-Waals-Potential wiedergegeben /10/.

Das einfachste Modell für das Mischen der Hyperfeinniveaus besteht darin, daß die Wechselwirkung die Richtung irgend-eines Drehimpulses von I* verändert /11/. Zu klären ist nun, welcher Drehimpuls umorientiert werden kann, und welchen Einfluß die Umorientierung auf Hyperfeinübergänge hat.

Das Jodatom besitzt Bahndrehimpuls L , Spindrehimpuls S , Hüllendrehimpuls $J = L + S$, Kerndrehimpuls I und Gesamtdrehimpuls $F = I + J$. Wegen der Annahme rein elektrostatischer Wechselwirkung kann man sofort eine Umorientierung von I oder S ausschließen. Eine Umorientierung dieser Drehimpulse kann nur über deren magnetisches Moment erfolgen, und dazu ist eine magnetische Wechselwirkung notwendig.

Welcher der verbliebenen Drehimpulse L , J , F beim Stoß umorientiert wird, darüber gibt ein Vergleich charakteristischer Zeiten Aufschluß. Diese Zeiten sind die Hyperfeinperiode τ_{HF} , die Feinstrukturperiode τ_{FS} und die Stoßzeit τ_S . Für τ_S erhält man größenordnungsmäßig 10^{-12} s, wenn man für die Reichweite der Wechselwirkung 1 nm und für die mittlere Relativgeschwindigkeit 300 m/s ansetzt. Innerhalb dieser Zeitspanne muß die Umorientierung eines der Drehimpulse erfolgen.

Aus der Feinstrukturaufspaltung und der Hyperfeinaufspaltung kann man die übrigen Zeiten abschätzen, man erhält für τ_{FS} ungefähr 5×10^{-15} s und für τ_{HF} ungefähr 5×10^{-10} s. Solche Zeitspannen benötigen die jeweiligen Drehimpulse ($L + S$ bzw. $J + I$) zur Ankopplung aneinander, falls sie durch irgendeine Wechselwirkung entkoppelt worden sind.

Die Hyperfeinperiode τ_{HF} ist viel länger als die Stoßzeit τ_S , deshalb wird der Kernspin I z.B. einer Umorientierung von J innerhalb von 10^{-12} s nicht folgen können. Der Kernspin wird also abgekoppelt "stehen" bleiben. Erst nach dem Abklingen der Stoßwechselwirkung koppeln der "stehengebliebene" Spin I und umorientierte Spin J wieder zu F .

Das Stehenbleiben des Kernspins drückt man durch eine Auswahlregel aus:

$$|I m_I\rangle \not\rightarrow |I m_I'\rangle$$

Die Kopplungszeit τ_{FS} ist viel kürzer als die Stoßzeit τ_s , der Spin S wird jeder Änderung von L augenblicklich folgen können. Demnach sind die Drehimpulse L und S auch während der Stoßwechselwirkung zu J gekoppelt.

Also orientiert ein Stoß allenfalls J um. Der Wirkungsquerschnitt für die Umorientierung kann mit Hilfe der quantenmechanischen Störungstheorie berechnet werden, im Fall von I^* muß man dazu folgende Übergangsamplitude kennen:

$$\langle J = \frac{1}{2}, m_J = \pm \frac{1}{2} | V(t) | J = \frac{1}{2}, m_J = \mp \frac{1}{2} \rangle$$

Ohne den expliziten Ausdruck des Operators $V(t)$ für die elektrostatische Wechselwirkung zu kennen, hat A. Gallagher mit Hilfe der Symmetrie der Zeitumkehr gezeigt, daß diese Amplitude verschwindet /12, 13/. Die einzig notwendige Annahme ist, daß sich der Operator bei Zeitumkehr folgendermaßen transformiert:

$$\hat{T} V(t) = V(-t)$$

$\hat{T}$ ist der Operator der Zeitumkehr. Diese Bedingung wird von allen Operatoren erfüllt, die nur von Koordinaten abhängig sind; somit auch vom Operator der elektrostatischen Wechselwirkung. Die Anwendung des Zeitumkehroperators auf Winkelfunktionen ergibt /22/

$$\hat{T} | J, m_J \rangle = (-1)^{J-m_J} | J, -m_J \rangle$$

speziell im Fall des angeregten Jodatoms

$$\hat{T} | J = \frac{1}{2}, m_J = \frac{1}{2} \rangle = - | J = \frac{1}{2}, m_J = -\frac{1}{2} \rangle$$

Die Übergangsamplitude in einem System mit umgekehrter Zeitrichtung lautet damit:

$$- \langle J = \frac{1}{2}, m_J = \frac{1}{2} | V(-t) | J = \frac{1}{2}, m_J = -\frac{1}{2} \rangle$$

Die Forderung nach Vorzeichengleichheit der Amplituden in beiden Zeitsystemen

ist nur erfüllt, wenn sie verschwinden. Damit erhält man eine zweite Auswahlregel:

$$|j = \frac{1}{2}, m_j = \pm \frac{1}{2}\rangle \not\rightarrow |j = \frac{1}{2}, m_j = \mp \frac{1}{2}\rangle$$

Diese Regel wurde zum ersten Mal von Gallagher in allgemeiner Form abgeleitet:

$$|j, m_j\rangle \not\rightarrow |j - m_j\rangle \quad \text{für } j = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \dots$$

Besonders einschneidend wirkt diese Regel, wenn der Hüllendrehimpuls J des Zustands gleich $1/2$ ist. Der einzig mögliche Übergang $m_j \rightarrow -m_j$ ist dann verboten.

Um nun die Wahrscheinlichkeit für Übergänge zwischen Hyperfeinniveaus zu berechnen, entwickelt man den Zustand $|F m_F\rangle$ nach den Drehimpulsfunktionen von Hülle $|J m_J\rangle$ und Kern $|I m_I\rangle$. Dies geschieht mit Hilfe der Clebsch-Gordan-Koeffizienten $\langle J m_J I m_I | F m_F \rangle$:

$$|F m_F\rangle = \sum_{m_I, m_J} \langle j m_j I m_I | F m_F \rangle \cdot |I m_I j m_j\rangle$$

Im Falle von I^* sorgen die beiden Auswahlregeln dafür, daß durch einen Stoß die Funktionen $|J m_J\rangle$ und $|I m_I\rangle$ nicht geändert werden und damit auch der Hyperfeinzustand erhalten bleibt:

$$|F m_F\rangle \not\rightarrow |F' m_F'\rangle \quad \text{wenn } j = \frac{1}{2}.$$

Die elektrostatische Wechselwirkung vermag keine Übergänge zwischen den Subniveaus eines Zustands mit $J = 1/2$ zu induzieren. Nichtadiabatische und magnetische Beiträge zur Stoßwechselwirkung führen zu einer langsamen Relaxation. Für Übergänge zwischen den Subniveaus von Thallium $6^2P_{1/2}$ z.B. wurde ein Stoßquerschnitt in der Größe von 10^{-18} cm^2 gemessen /14/. Bei einem Puffergasdruck von 1 bar erhält man eine Relaxationszeit von 1 μs . Nahezu gleiche Werte kann man im Falle von $I^* 5^2P_{1/2}$ aufgrund der ähnlichen Elektronenhülle erwarten.

3. Resonanter Energieübertrag

Wenn ein angeregtes Jodatom $J^*(1)$ und ein zweites Jodatom $J(2)$, das im Grundzustand ist, miteinander stoßen, dann gibt es eine Wahrscheinlichkeit dafür, daß das erste Atom seine Anregungsenergie auf das zweite Atom überträgt /15/.



Diesen Stoßprozeß bezeichnet man als resonanten Energieübertrag.

Die Hyperfeinaufspaltung des Jodatoms ist ungefähr um einen Faktor 300 kleiner als die thermische Bewegungsenergie der Stoßpartner. Dadurch ist es möglich, daß der Energieübertrag beliebige Hyperfeinniveaus des angeregten und des Grundzustands verbindet, d.h. ein Jodatom in einem Hyperfeinniveau des Grundzustands kann in ein beliebiges Niveau des angeregten Zustands übergehen, während das zweite Atom von einem Niveau des angeregten Zustands in irgendein Niveau des Grundzustands übergeht. Ein mögliches Defizit in der Energiebilanz wird durch die thermische Bewegungsenergie ausgeglichen.

Der Stoßquerschnitt für diesen Relaxationsprozess kann zuverlässig in quasiklassischer Näherung berechnet werden /2/. Der Abstand $R(t,v)$ der beiden Stoßpartner als Funktion der Zeit t und der Relativgeschwindigkeit v wird klassisch behandelt. Der kleinste Abstand g wird Stoßparameter genannt.

Mit der Quantentheorie wird die Wahrscheinlichkeit $W(g,v)$ des Energieübertrags berechnet. Ist $W(g,v)$ bekannt, so erhält man den totalen Stoßquerschnitt σ durch Integration über g . Bei der Berechnung von $W(g,v)$ werden zwei Bereiche unterschieden (siehe Abb. 4). Für kleine Stoßparameter ($g \rightarrow 0$) ist wegen der typischen Oszillationen von $W(g,v)$ die mittlere Wahrscheinlichkeit des Energieübertrags $\langle W_0(g,v) \rangle = 1/2$. Für große Stoßparameter ($g \rightarrow \infty$) bestimmt die Art der Wechselwirkung die Form von $W_\infty(g,v)$. Die

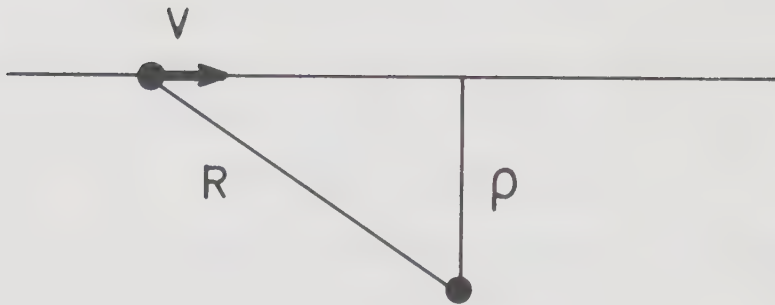


Abb. 2 Quasiklassische Näherung für die Bewegung der Stoßpartner.

Grenze zwischen beiden Bereichen ist durch den Abstand g_0 gegeben, man erhält ihn aus der Bedingung $W_{\infty}(g_0, v) = 1/2$.

Damit ergibt sich für den Stoßquerschnitt:

$$\sigma = \int_{g_0}^{\infty} W_{\infty}(g, v) g dg + \int_0^{g_0} \frac{1}{2} \cdot g dg$$

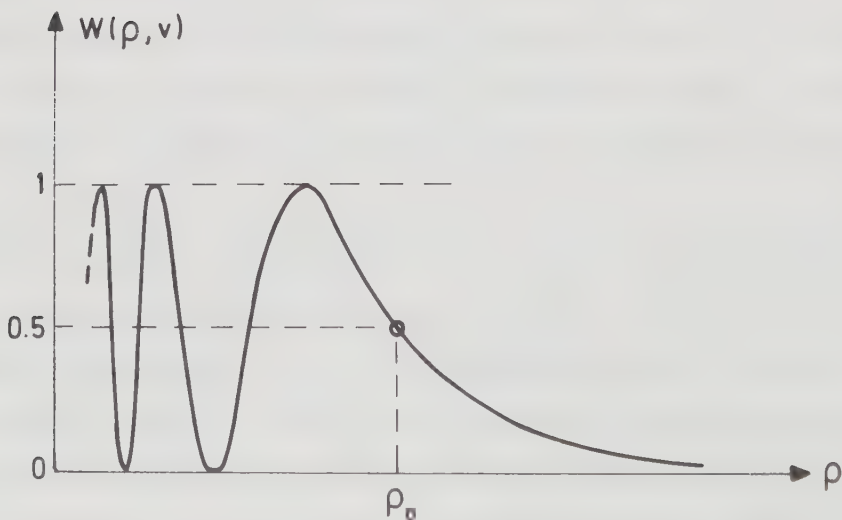


Abb. 3 Typischer Verlauf der Wahrscheinlichkeit $W(g, v)$ des Energieübertrags als Funktion des Stoßparameters g .

In ausreichender Genauigkeit bestimmt man $W_{\infty}(\varrho, v)$ mit Hilfe der zeitabhängigen Störungstheorie erster Ordnung. Man betrachtet einen Stoß, bei dem das Jodatom J (1), das vor dem Stoß im angeregten Zustand $|F_1 J_1\rangle$ ist, in irgendein Subniveau $|F_1' J_1'\rangle$ des Grundzustands übergeht; während das Atom J (2), das anfangs in einem Subniveau $|F_2 J_2\rangle$ des Grundzustands ist, in einen angeregten Zustand $|F_2' J_2'\rangle$ übergeht. Die Energie-Eigenwerte der beteiligten Zustände werden mit E_1, E_1', E_2 und E_2' bezeichnet:

$$W_{\infty}(\varrho, v) = \frac{1}{N} \left| \frac{1}{\hbar} \langle \gamma_1 F_1 \gamma_2 F_2 | V(\varrho, t, v) | \gamma_1' F_1' \gamma_2' F_2' \rangle \cdot \right. \\ \left. \left[\exp \frac{i}{\hbar} (E_1 + E_2 - E_1' - E_2') \cdot t \right] dt \right|^2$$

N ist ein Normierungsfaktor, der die Entartungen der Zustände berücksichtigt. Der Operator $V(t, \varrho, v)$ enthält nur die elektrostatische Wechselwirkung. Daß die magnetische Wechselwirkung in diesem Fall vernachlässigbar kleine Beiträge zum Stoßquerschnitt liefert, wird im Kapitel "Magnetische Wechselwirkung" gezeigt. Zur Berechnung von $W_{\infty}(\varrho, v)$ entwickelt man die elektrostatische Wechselwirkung nach Multipolordnungen. Da der Jodlaserübergang für elektrische Dipolübergänge verboten ist, verschwinden die Matrixelemente, die Dipolwechselwirkungen enthalten. In niedrigster Ordnung bleibt der Term der Quadrupol-Quadrupol-Wechselwirkung erhalten. Bei Vernachlässigung der (für die Größe des Stoßquerschnitts unwesentlichen) Winkelabhängigkeit ergibt sich für den Operator $V(t, \varrho, v)$ die folgende Abhängigkeit vom Abstand $R(v, t)$:

$$V(t, \varrho, v) \sim \frac{e^2 Q^2}{R^5(v, t)}$$

Die Größe des Quadrupolmoments Q kann man mit Hilfe des Radialintegrals abschätzen:

$$Q \approx \langle 5^2 p_{3/2} | r^2 | 5^2 p_{3/2} \rangle$$

Die Berechnung der Wahrscheinlichkeit vereinfacht sich, wenn man die Exponentialfunktion durch eine 1 annähert. Das ist gerechtfertigt, da sich der Exponent während der Stoßzeit nur wenig ändert. Durch Integration über die Zeit erhält man:

$$W(g, v) = 0.4 \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \langle 5^2 p_{1/2} | r^2 | 5^2 p_{3/2} \rangle^4 / (h^2 g^8 v^2)$$

Das Radialintegral $\langle 5^2 p_{1/2} | r^2 | 5^2 p_{3/2} \rangle$ wurde von Yukov /2/ mit Hilfe semiempirischer Wellenfunktionen bestimmt. Die Integration über g ergibt den Stoßquerschnitt $\sigma(v)$. Im Rahmen der Genauigkeit kann auf die korrekte Mittelung über die Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung verzichtet werden. Nach Einsetzen einer mittleren thermischen Relativgeschwindigkeit von 300 m/s erhält Yukov für den Stoßquerschnitt $\sigma \approx 5,0 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$. Die Relaxationszeit τ ergibt sich mit der Beziehung

$$1/\tau = n v \sigma$$

Im Fall eines gesättigten Jodlaserverstärkers kann man für I eine Dichte von $n = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ annehmen. Damit ergibt sich eine Zeitkonstante von ungefähr 30 ns.

4. Austausch-Wechselwirkung

Stoßen zwei Atome (Moleküle) mit nicht abgeschlossenen Schalen, so können die Stoßpartner Valenzelektronen austauschen. Dabei verliert das erste Atom ein Elektron mit einer bestimmten Spinorientierung an das zweite Atom und erhält ein Elektron mit einer anderen Spinorientierung. Durch diesen Austausch findet eine Umorientierung der Hüllendrehimpulse statt. Da der Hyperfeinzustand durch die gegenseitige Orientierung des Hüllen- und des Kerndrehimpulses bestimmt ist, sind mit dem Austausch Übergänge zwischen Hyperfeinniveaus verbunden /16/.

Im Jodlasermedium tritt die Austauschwechselwirkung beim Stoß von I^* mit den Teilchen auf, die ebenfalls eine nicht abgeschlossene Schale besitzen, das sind I^* , I und $C_3F_7^-$. Da aber zum einen die Wechselwirkung zwischen I^* und I durch resonanten Energieaustausch dominiert wird, und da zum anderen der Wirkungsquerschnitt für den Stoß von I^* mit $C_3F_7^-$ nur schwierig zu berechnen ist, wird im folgenden die Abschätzung des Wirkungsquerschnitts nur für den Stoß zweier Jodatome I^* und I^* durchgeführt. Dabei wird einer von Yukov vorgeschlagenen Methode gefolgt [2].

Sie beruht auf der Annahme, daß die Wahrscheinlichkeit W des Elektronenaustausches proportional ist zur gegenseitigen Durchdringung der Elektronenwolken während der Stoßzeit τ_s :

$$W \sim |\psi_1|^2 \cdot V_2 \cdot \tau_s \cdot |\psi_2|^2 V_1 \tau_s$$

Das Produkt $|\psi_1|^2 \cdot V_2$ gibt die Aufenthaltswahrscheinlichkeit eines Valenzelektrons des ersten Atoms im Volumen V_2 des zweiten Atoms an. Entsprechendes gilt für $|\psi_2|^2 V_1$. Die Wahrscheinlichkeitsdichte $|\psi|^2$ kann man mit angenäherten Wellenfunktionen [17] bestimmen:

$$|\psi|^2 = \frac{1}{N^2} \left(\frac{2\pi r}{n a_B} \right)^{2n-2} \exp \left(-\frac{2r}{n a_B} \right)$$

Im Fall des Jodatoms beträgt die effektive Quantenzahl $n = 1,2$. a_B ist der Bohr'sche Radius und r die Ortskoodinate. N ist ein Normierungsfaktor. Zur Abschätzung des Stoßquerschnittes σ wird angenommen, daß die Wahrscheinlichkeit des Elektronenaustausches nur dann wesentlich ist, wenn der Abstand der Stoßpartner minimal, d.h. gleich dem Stoßparameter g ist. Durch Einsetzen von Näherungen für die Stoßzeit

$$\tau_s \approx g/v$$

und für die Volumina

$$V_1 \approx V_2 \approx (a_B n)^3$$

erhält man folgenden Ausdruck für die Wahrscheinlichkeit:

$$W \sim \frac{g^2}{v^2} \left(\frac{2g}{na_B} \right)^{4n-4} \exp \left(- \frac{4g}{na_B} \right)$$

Wie im vorhergehenden Kapitel ergibt sich der Wirkungsquerschnitt durch Integration über alle Abstände g der Stoßpartner. Wenn man wieder 300 m/s für die Relativgeschwindigkeit v ansetzt, erhält man nach Yukov $\sigma \approx 6 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$.

Ein ähnlicher Wert für den Wirkungsquerschnitt sollte sich für Stöße von I^* mit dem Radikal $C_3F_7\cdot$ ergeben. Bei einer angenommenen Dichte von 10^{17} Teilchen/cm³ kann man eine Relaxationszeit von 100 ns erwarten.

5. Magnetische Wechselwirkung

Die Jodatome I und I^* , sowie das Radikal $C_3F_7\cdot$ besitzen ein permanentes magnetisches Moment aufgrund eines ungepaarten Elektrons. Die stärkste magnetische Wechselwirkung zwischen diesen Teilchen ist die magnetische Dipol-Dipolwechselwirkung. Der Wechselwirkungsoperator ist von der Form

$$V \sim \frac{\mu_B^2}{R^3}$$

μ_B ist das Bohr'sche Magneton. Der Wirkungsquerschnitt für einen Übergang zwischen Hyperfeinniveaus kann mit der quasiklassischen Näherung abgeschätzt werden. Die durchzuführende Rechnung gleicht derjenigen, die im Abschnitt "Resonanter Energieübertrag" dargestellt ist. Der wesentliche Unterschied betrifft nur den Wechselwirkungsoperator. Die Abschätzung von Yukov ergibt für den Wirkungsquerschnitt den folgenden Wert:

$$\sigma \approx 4 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$$

Dieser Wirkungsquerschnitt ist wesentlich kleiner als die beiden zuvor ermittelten Querschnitte für resonanten Energieübertrag und für die Spin-Austauschwechselwirkung. Das berechtigt die Annahme, daß bei diesen Stößen die magnetische Wechselwirkung vernachlässigt werden kann.

6. Zusammenfassung der theoretischen Ergebnisse

Die Relaxation zwischen den Hyperfeinniveaus des angeregten Jodatoms erfolgt durch thermische Stöße. Die Tabelle 2 zeigt eine Zusammenstellung der häufigsten Stoßprozesse und ihrer auf theoretischer Basis gewonnenen Wirkungsquerschnitte für Relaxation.

Trotz der hohen Dichten und der damit verbundenen hohen Stoßfrequenzen ist der Beitrag der Edelgasatome und der Jodidmoleküle zur Relaxation gering. Denn aufgrund einer Auswahlregel sind die zugehörigen Wirkungsquerschnitte sehr klein.

Wechsel- wirkung	Stoßprozeß	Wirkungs- querschnitt cm ²	Relaxations- zeit ns
elektrostatische Wechselwirkung	I* + Ar	10 ⁻¹⁸	1000
	I* + C ₃ F ₇ I		
resonanter Energieübertrag	I* + I	5 x 10 ⁻¹⁴	30
Austausch- Wechselwirkung	I* + I*	6 x 10 ⁻¹⁵	100
magnetische Wechselwirkung	I* + I(*)	4 x 10 ⁻¹⁷	6000
	I* + C ₃ F ₇ -		

Tab. 2 Zusammenstellung der theoretisch gewonnenen Wirkungsquerschnitte für Relaxation im oberen Laserniveau. Die entsprechenden Relaxationszeiten gelten für einen typischen Fall.

Die Relaxation wird durch resonanten Energieübertrag beherrscht, falls die Dichte der Jodatome I im Grundzustand groß ist. Im gesättigten Lasermedium erreicht die Dichte von I typischerweise Werte von $5 \times 10^{16}/\text{cm}^3$, damit erhält man eine Zeitkonstante in der Größe von 30 ns.

Der Beitrag der Austauschwechselwirkung ist dann dominierend, wenn die Dichte von I^* wesentlich die von I übersteigt. Typische Dichten von I^* betragen $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, in diesem Fall ergibt sich eine Zeitkonstante von ca. 100 ns.

Der Einfluß der magnetischen Wechselwirkung wird wegen des kleinen Wirkungsquerschnitts fast immer vernachlässigbar sein.

C. EXPERIMENTE ZUM NACHWEIS DER RELAXATION

Die Aufgabe der vorliegenden Arbeit war es, die Hyperfeinrelaxation im oberen Laserniveau experimentell zu untersuchen. Die theoretischen Abschätzungen lassen vermuten, daß die Relaxation auf einer Zeitskala von 100 ns abläuft. Zu Beginn dieser Arbeit war jedoch keine direkte experimentelle Beobachtung der Relaxation bekannt. Aufgrund der daraus resultierenden Unsicherheit wurde zunächst ein Vor- experiment durchgeführt, das es erlaubte, nachzuweisen, ob mit der gewählten experimentellen Anordnung tatsächlich Relaxation gemessen wird. Dieses Experiment und seine Ergebnisse werden im folgenden beschrieben.

1. Meßmethode und experimentelle Anordnung

Der Relaxationsprozeß zwischen den Hyperfeinniveaus des oberen Laserzustands wurde mit folgender Meßmethode beobachtet:

In einem Testverstärker (V2) sind durch den Pumpvorgang die beiden Hyperfeinniveaus $F = 3$ und $F = 2$ des oberen Laserzustands besetzt worden. Ein Oszillator-Vorverstärker-System erzeugt einen starken, sättigenden ns-Puls auf der 3 - 4 Linie. Dieser erniedrigt beim Durchlaufen des Testverstärkers die Besetzung des Niveaus $F = 3$, die Besetzung des Niveaus $F = 2$ bleibt erhalten. Somit entsteht ein Ungleichgewicht zwischen den Besetzungen, das durch Relaxation ausgeglichen wird. Die Einstellung des Gleichgewichts beobachtet man, indem ^{man} nach der Sättigung die zeitliche Entwicklung der Inversionen auf dem 3 - 4 und 2 - 2 Übergang abtastet. Dazu wird unmittelbar nach dem sättigendem Puls eine Serie von schwachen Tastpuls auf den entsprechenden Übergängen durch den Testverstärker geschickt. Aus ihrer Verstärkung erhält man den Zeitverlauf der Inversionen und damit Kenntnis über den Ablauf der Hyperfeinrelaxation. Wie später noch gezeigt wird, kann man aus dem Zeitverlauf der Inversionen direkt die Umverteilung der Besetzungen zwischen den Niveaus des oberen Laserzustands ablesen.

Das Abtasten der Inversionen auf zwei Hyperfeinstruktur-Übergängen hat einen großen Vorteil: Durch Addition der Inversionen 3 - 4 und 2 - 2 erhält man eine Größe, die im folgenden Gesamtinversion genannt wird. Der Zeitverlauf der Gesamtinversion erlaubt es festzustellen, in welchem Maß die Messung durch andere Prozesse, wie z.B. Rekombination von Jodatomen im Grundzustand oder Quenchen des angeregten Zustands, gestört ist.

Hyperfeinrelaxation ist gleichbedeutend mit einer Umverteilung der Besetzungen zwischen diesen Niveaus. Das hat zur Folge, daß z.B. mit einer Abnahme der Inversionen 2 - 2 eine entsprechende Zunahme der Inversionen 3 - 4 verbunden ist. Die Gesamtinversion wird durch Relaxation nicht geändert. Neben der Relaxation können andere Prozesse auftreten, die ebenfalls zu einer zeitlichen Änderung der Inversion führen. So verursacht z.B. die Entleerung des unteren Laserniveaus durch Rekombination ein Anwachsen der Inversionen. Solche (anderen) Prozesse haben gemeinsam, daß sie im Gegensatz zur Hyperfein-Relaxation zu einer Änderung der Gesamtinversion führen. Somit kann man anhand des zeitlichen Verlaufs der Gesamtinversion störende Einflüsse von der Hyperfeinrelaxation trennen.

Die zeitliche Entwicklung der Inversionen wird durch Messung der Kleinsignalverstärkung abgetastet, als Tastpulse wurden Mode-Lock-Pulszüge verwendet. Zu ihrer Erzeugung wurde ein abstimmbarer Oszillator entwickelt, der entweder auf der 3 - 4 Linie oder 2 - 2 Linie emittiert. Einzelheiten über diesen Laser sind im Anhang I angegeben.

Die Abb. 4 zeigt ein Schema des experimentellen Aufbaus, er besteht im wesentlichen aus zwei Laseroszillatoren, einem Vorverstärker V1 und einem Testverstärker V2. Die Oszillatoren und Verstärker bestehen aus Quarzröhren, die das Lasermedium, ein Gemisch aus C_3F_7I und Argon, enthalten. Die inneren Durchmesser der Röhren betragen ca. 8 mm für die Oszillatoren, ca. 16 mm für den Vorverstärker und ca. 25 mm

für den Testverstärker. Die Rohrdurchmesser sind deutlich größer als die Durchmesser der Laserstrahlen. Die Quarzröhren sind von Blitzlampen umgeben. Beim Beblitzen des Mediums wird durch Photolyse eine Inversion auf dem Laserübergang erzeugt. Die Blitzlampen werden von Hochspannungskondensatoren gespeist, die Entladungsdauer beträgt ca. $1\text{ }\mu\text{s}$ für die Oszillatoren und ca. $4\text{ }\mu\text{s}$ für die Verstärker.

Ein Meßvorgang vollzieht sich folgendermaßen: Der aktiv modengekoppelte Oszillator 1 emittiert einen Pulszug auf der Frequenz der 3 - 4 Linie. Aus dem Pulszug wird durch das Pulsschneidesystem ein Einzelpuls herausgeschnitten, seine Pulslänge beträgt ca. 700 ps , seine Energie ca. 1 mJ . Dieser Puls durchläuft nun den Vorverstärker V1 und anschließend den Testverstärker. Der Vorverstärker hat die Aufgabe, den Puls soweit zu verstärken, daß er den Testverstärker zu sättigen vermag. Nach dem Testverstärker trifft der Puls auf eine Brewsterplatte, die er aufgrund seiner senkrechten Polarisierung ohne Reflexion passiert. Die Trennung von sättigendem und abtastendem Puls, die durch die unterschiedliche Polarisationsrichtung bewerkstelligt wird, ist notwendig, um ein Übersteuern des Detektors durch den sättigenden Puls zu verhindern. Der Einfluß der unterschiedlichen Polarisations Ebenen auf die Meßergebnisse wird bei der Diskussion dargestellt.

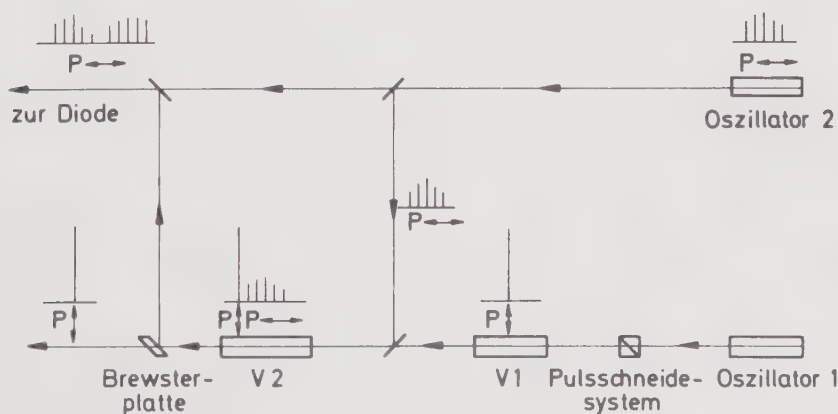


Abb. 4 Schema der experimentellen Anordnung

Der modengekoppelte Oszillator 2 ist abstimmbar auf verschiedene Linien des Hyperfeinspektrums. Er emittiert einen Pulszug, der aus ca. sechs einzelnen ns-Pulsen in einem gegenseitigem Abstand von 16 ns besteht. Der Pulszug wird mit einem halbdurchlässigen Spiegel geteilt. Der eine Teil dient als Referenzsignal und trifft direkt auf einen Detektor. Der andere Teil durchläuft den Testverstärker und tastet hier die Inversionen auf verschiedenen Übergängen des Hyperfeinspektrums ab. Der Oszillator 2 wird mittels eines Zeitverzögerungsgeräts so getriggert, daß die abtastenden Pulse unmittelbar dem sättigendem Puls durch den Testverstärker folgen. Anschließend werden die Tastpulse aufgrund ihrer horizontalen Polarisierung von der Brewsterplatte reflektiert und treffen etwas verzögert auf den Detektor.

2. Betrachtungen zu möglichen Fehlerquellen

Es gibt eine Anzahl von Einflüssen, die eine zeitliche Änderung der Besetzungen vortäuschen oder die Interpretation der Meßergebnisse erschweren können. Zur Vermeidung solcher Effekte und zur Schaffung möglichst klarer, eindeutiger Verhältnisse im Testverstärker wurde vor Beginn der Relaxationsmessungen eine Reihe vorbereitender Experimente und Überlegungen durchgeführt. Näher eingegangen wird im folgenden auf Effekte, die hervorgerufen werden können durch

- eine ungünstige Strahlgeometrie,
- die Störung des Relaxationsverlaufs durch das Abtasten,
- das Magnetfeld der Blitzlampen,
- das Nachleuchten der Blitzlampen.

Die vorbereitenden Experimente und Überlegungen ermöglichten es, durch besondere Maßnahmen beim Aufbau und bei der Durchführung der Relaxationsmessungen diese (und weitere) störende Effekte gering zu halten.

- Strahlgeometrie

Durch den Einbau von gekrümmten Spiegeln und Blenden konnte die Strahlgeometrie so gestaltet werden, daß der sättigende Puls einen wesentlich größeren Querschnitt besitzt als die abtastenden Pulse. Die Intensitätsverteilung der Pulse wurde experimentell mit der "Blendenmethode" aufgenommen. Dabei wird eine Blende auf die Strahlachse justiert. Die transmittierte Intensität I_T wird als Funktion der Blendenöffnung (Radius r) bestimmt. Durch Differenzieren erhält man die radiale Intensitätsverteilung I_R :

$$J(r) = \frac{1}{2\pi r} \cdot \frac{d I_T}{d r}$$

Abbildung 5 zeigt die gemessenen Querschnitte vor dem Eingang des Testverstärkers. Wie gewünscht, besitzt der sättigende Puls eine wesentlich größere Halbwertsbreite als ein Tastpuls. Aus den unterschiedlichen Intensitätsverteilungen ergeben sich drei Vorteile.

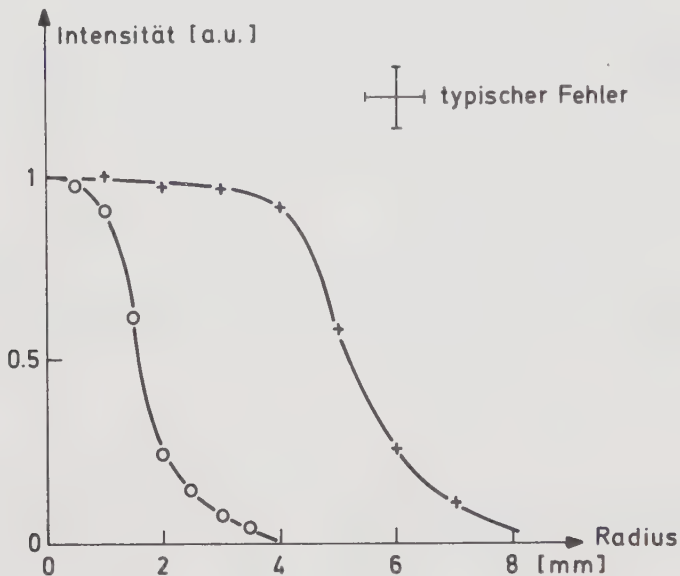


Abb. 5 Intensitätsverteilungen von sättigenden (+) und abtastenden (o) Pulsen

Erstens, eine kleine Dejustierung der beiden Strahlachsen im Testverstärker ist ohne Einfluß auf die Meßergebnisse; denn das abgetastete Volumen befindet sich dann immer noch im gesättigten Bereich.

Zum zweiten wird die Kleinsignalverstärkung durch die Diffusion von Jodatomen am Rande des gesättigten Bereichs nicht gestört. Der für die Diffusion verantwortliche Dichtegradient ist innerhalb des abgetasteten Volumens vernachlässigbar klein.

Schließlich vereinfacht sich die Auswertung, da aufgrund der nahezu homogenen Sättigung innerhalb des abgetasteten Volumens die Teilchendichten fast konstant über den Querschnitt sind. Die Radiale Dichteverteilung kann vernachlässigt werden.

- Störung durch das Abtasten

Natürlich soll die Beobachtung der Relaxation ihren zeitlichen Verlauf möglichst wenig stören. Die Änderung der Besetzungen durch das Abtasten ist gering, wenn die Energie der Tastpulse klein gegenüber der Sättigungsenergie ist. Die Eingangsenergiegedichte wurde im Experiment durch Filter auf ca. $10 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ reduziert, die Sättigungsenergie lag typischerweise bei $100 \text{ mJ}/\text{cm}^2$. Selbst bei einer Kleinsignalverstärkung von 100 wird die Inversion um höchstens ein Prozent erniedrigt. Im Rahmen der Meßgenauigkeit (ca. 5 %) wurde keine Inversionserniedrigung durch das Abtasten beobachtet.

- Magnetfeld der Blitzlampen

Ein anderes Experiment befaßte sich mit dem Einfluß des Magnetfeldes, das beim Betrieb des Jodlasers entsteht. Für wirkungsvolles Pumpen sind die Blitzlampen nahe am Medium angeordnet. Der Lampenstrom erreicht Spitzenwerte von 10 kA. Zwar sind die Lampen so angeordnet, daß sich die Magnetfelder in der Mitte des Mediums aufheben; jedoch treten schon bei wenigen Millimetern Abweichung Magnetfelder bis zu einigen hundert Gauß auf. Aufgrund des Zeemaneffekts führen sie zu Verzerrungen des Verstärkungsprofils. Deshalb wurden die Relaxationsmessungen zu einem Zeitpunkt durchgeführt, zu dem der Blitzlampenstrom, und damit das Magnetfeld, bereits abgeklungen war. Der Stromverlauf wurde mit einem niederohmigen Koaxialwiderstand gemessen (Abb. 6). Der Zeitpunkt der Relaxationsmessung liegt bei ca. $10 \mu\text{s}$ nach dem Triggern der Lampen des Testverstärkers.

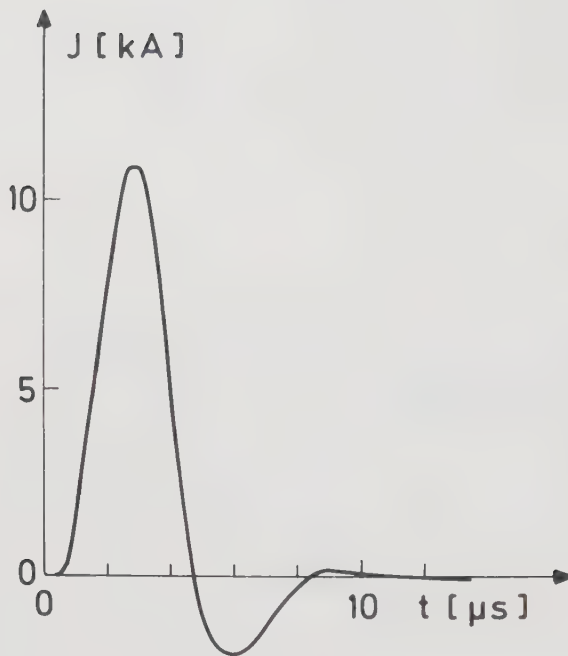


Abb. 6 Gemessener Stromverlauf einer Blitzlampe

- Nachleuchten der Blitzlampen

Selbst bei abgeklungenem Strom emittieren die Blitzlampen noch Licht. Mit zeitabhängigen Kleinsignalmessungen wurde ein eventuelles Nachpumpen der Inversion kontrolliert. Auf einem Zeitintervall von einhundert Nanosekunden konnte im Rahmen der Meßgenauigkeit (5 %) keine Änderung der Inversion festgestellt werden.

3. Meßergebnisse und Diskussion

Die Abb. 7 zeigt ein typisches Meßsignal, wie es auf dem Oszillographenschirm erhalten wurde. Der Anfang des Signals wird von den Pulsen (R_i) des Referenzstrahls gebildet, die Pulse (T_i) des Taststrahls formen das Ende. Der Abstand zwischen zwei aufeinanderfolgenden Pulsen beträgt 16 ns. Ein Vergleich der entsprechenden Pulse von Tast- und Referenzstrahl ergibt nach Berücksichtigung der Nichtlinearität

der Diode die Kleinsignalverstärkung. Der Puls (S) wird durch eine geringfügige Reflexion des sättigenden Pulses an der Brewsterplatte hervorgerufen, dadurch erhält man Aufschluß über die zeitliche Verschiebung des sättigenden zu den abtastenden Pulsen. Die Pulse T_0 und T_1 durchlaufen den Testverstärker vor der Sättigung und erfahren die volle Kleinsignalverstärkung. Auf diese Weise bekommt man Information über das zeitliche Verhalten der Kleinsignalverstärkung vor und nach der Sättigung.

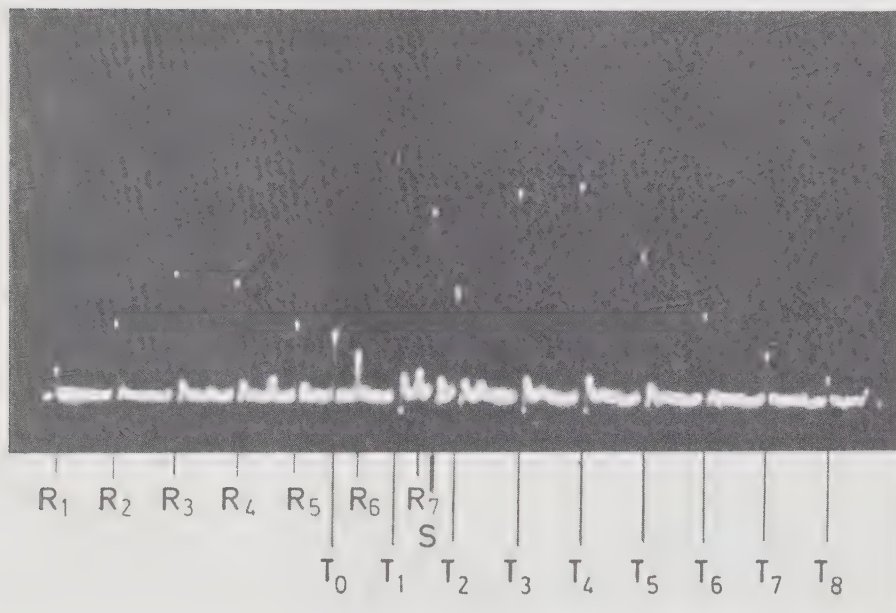


Abb. 7 Meßsignal, R_i sind die Pulse des Referenzstrahls, T_i sind die Pulse des Taststrahls und S ist eine geringfügige Reflexion des sättigenden Pulses

Aus der gemessenen Kleinsignalverstärkung erhält man den zeitlichen Verlauf der Inversionen. Im Fall der 3 - 4 Linie müssen die verschiedenen Polarisationssebenen von sättigenden und abtastenden Pulsen berücksichtigt werden.

Der Einfluß auf die Meßergebnisse wird anhand der Übergänge zwischen den magnetischen Subniveaus diskutiert. Die Subniveaus und die relativen Übergangswahrscheinlichkeiten sind für die 3 - 4 Linie in Abb. 8 dargestellt. Bei der Beschreibung des Jodatoms kann man die z-Achse ohne Vorbehalt so orientieren, daß sie parallel zur Polarisationssebene des sättigenden Pulses zu liegen kommt. Zur Verstärkung dieses Pulses tragen dann nur die Übergänge mit $\Delta m = 0$ bei. Aufgrund der verschiedenen Übergangswahrscheinlichkeiten stellt sich unmittelbar nach der Sättigung eine ungleiche

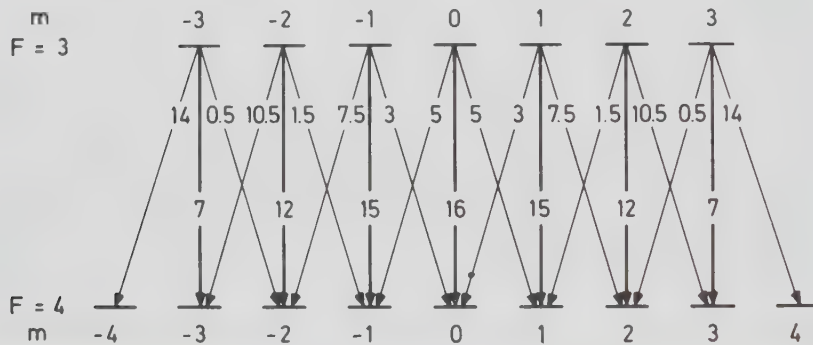


Abb. 8 Relative Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen den magnetischen Subniveaus der 3 - 4 Linie.

Besetzung der Subniveaus ein. So ist im Fall hoher Übergangswahrscheinlichkeit die Inversion zwischen zusammengehörigen Subniveaus stärker erniedrigt als im Fall schwacher. Die Besetzungsdifferenzen zwischen den Subniveaus gleichen sich durch Relaxation aus, und zwar mit den gleichen Zeitkonstanten wie die Hyperfeinrelaxationen. Demnach sind unmittelbar nach der Sättigung die Differenzen am größten; sie verschwinden mit fortschreitender Zeit.

Die Polarisationssebene der Tastpulse steht senkrecht zur z-Achse, zur Verstärkung tragen nur die Übergänge mit $\Delta m = \pm 1$ bei. Die Verstärkung setzt sich aus den Beiträgen der einzelnen, voneinander abweichenden Inversionen und ihren verschiedenen Übergangswahrscheinlichkeiten zusammen. Trotz der Kompliziertheit läßt sich aus der Verstärkung mit numerischen Methoden der Inversionsverlauf zwischen den Hyperfeinniveaus $F = 3$ und $F = 4$ berechnen. Andererseits kann man abschätzen, daß eine so umfangreiche Auswertung im Rahmen der Meßgenauigkeit nicht notwendig ist. Aufgrund der zahlreichen Übergänge unterscheidet sich die numerisch ermittelte Inversion nur unwesentlich von derjenigen, die man bei einer vollkommenen Gleichbesetzung der magnetischen Subniveaus erhält. Bei den Experimenten dieser Arbeit betrug der Unterschied weniger als 10 % des tatsächlichen Wertes. Aus diesem Grund wird die ungleiche Besetzung vernachlässigt und die Inversion $\Delta N(t)/\text{cm}^{-2}$ auf der 3 - 4 Linie aus der Kleinsignalverstärkung $V(t)$ mit folgender Gleichung berechnet:

$$\Delta N_{K-L} = \frac{1}{\sigma_{K-L}} \cdot \ln V_{K-L}(t)$$

Die Inversion auf der 2 - 2 Linie wird durch diese Gleichung exakt beschrieben, da hier die magnetischen Subniveaus immer gleich besetzt sind. Der Index k-l steht für 3 - 4 oder 2 - 2 und gibt an, welche Inversion gemessen wurde. Der Wirkungsquerschnitt σ_{3-4} wurde aus der Arbeit von W. Fuß und K. Hohla übernommen, das Verhältnis von σ_{2-2} zu σ_{3-4} wurde im Rahmen dieser Arbeit aus vergleichenden Kleinsignalmessungen bestimmt.

Der Inversionsverlauf als Funktion der Verzögerungszeit t zwischen sättigendem und abtastendem Puls ist in Abbildung 9 dargestellt. Die Inversion ΔN_{3-4} wird innerhalb einer ns durch den sättigenden Puls auf ca. 30 % des ursprünglichen Wertes erniedrigt. Anschließend nimmt durch Relaxation die Inversion zu, bis nach ca. 100 ns der Gleichgewichtswert erreicht ist.

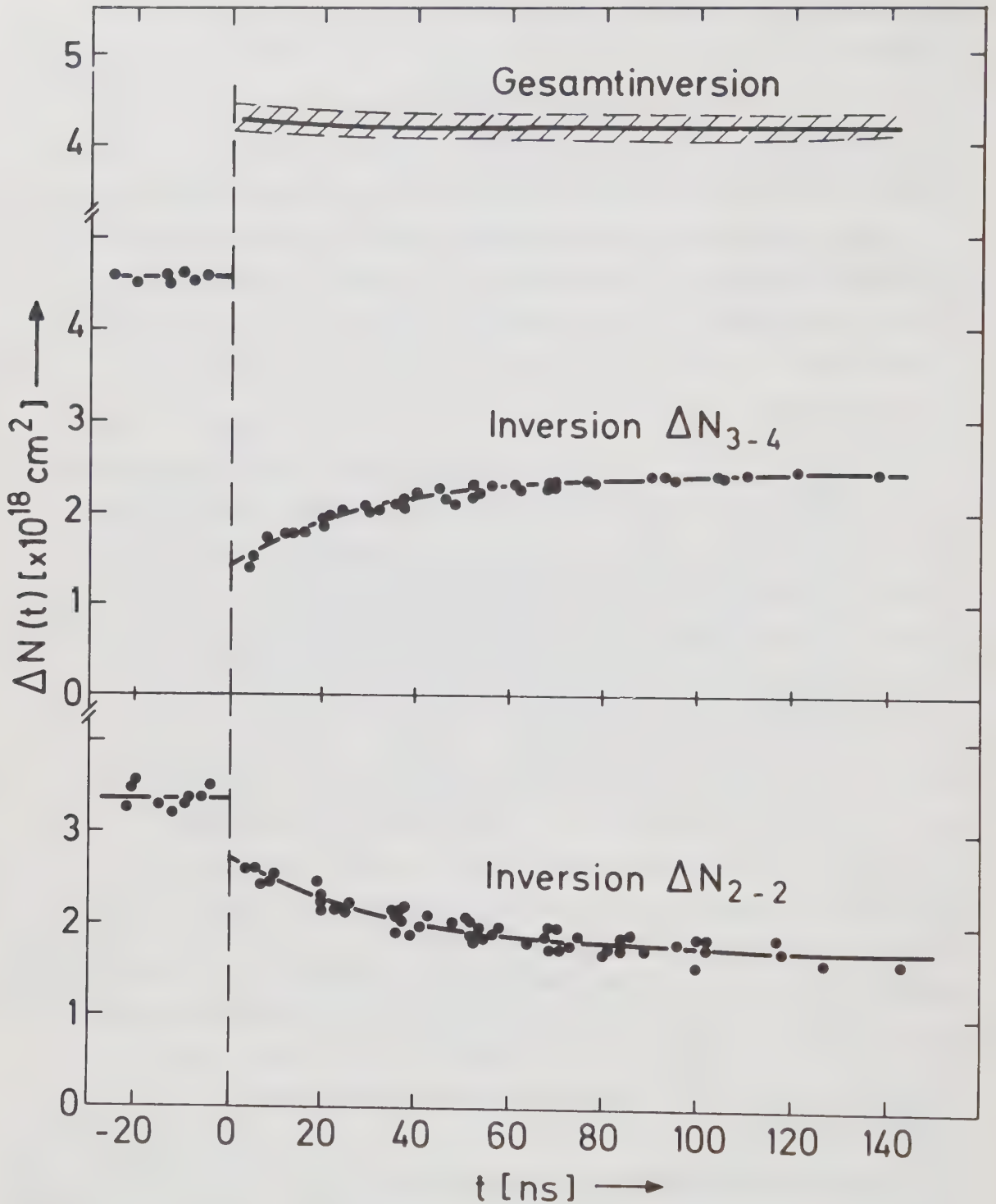


Abb. 9

Gemessene Inversionen $\Delta N(t)$ auf den Übergängen 3 - 4 und 2 - 2 als Funktion der Zeit. Zum Zeitpunkt $t = 0$ wurde die Besetzung des Niveaus $F = 3$ durch einen sättigenden Puls erniedrigt. Die Teilchendichten pro cm^3 betragen für Argon 7×10^{18} , für das Jodid 3×10^{18} , für I^* 6.6×10^{16} und für I 2.1×10^{16} .

Die Inversion ΔN_{2-2} zeigt zum Zeitpunkt der Sättigung einen ebenfalls schnellen, aber wesentlich geringeren Abfall. Die Ursache für diesen Sprung ist Relaxation im unteren Laserniveau, sie verteilt die Besetzung auch auf das Hyperfeinniveau $F' = 2$ und verringert die zugehörige Inversion. Anschließend nimmt die Inversion durch Relaxation im oberen Laserniveau weiter ab, bis sich ebenfalls nach ca. 100 ns der Gleichgewichtswert eingestellt hat. Die Gleichgewichtsbesetzungen verhalten sich wie 5 zu 7 aufgrund der Entartungen. Für die Auswertung wird angenommen, daß die Relaxation durch Stöße erfolgt. Die zeitliche Änderung der Besetzung $n_K(t)/\text{cm}^{-3}$ eines Subniveaus K ist dann proportional der Abweichung vom Gleichgewichtszustand $n_K(\infty)$; τ ist die Zeitkonstante der Relaxation.

$$\frac{\partial n_K}{\partial t} = - \frac{1}{\tau} (n_K(t) - n_K(\infty))$$

Die Integration über die Zeit ergibt eine Exponentialfunktion. Wenn man nun annimmt, daß die Teilchendichten über die Länge des Testverstärkers konstant sind (dies ist nahezu erreicht im Experiment), dann kann man über die Länge integrieren und erhält die Besetzungen $N_K(t)/\text{cm}^{-2}$

$$N_K(t) = N_K(0) \cdot e^{-t/\tau} + N_K(\infty)$$

$N(\infty)$ ist der Gleichgewichtswert. Subtrahiert man auf beiden Seiten die Besetzung des Grundzustands, so erhält man die Zeitabhängigkeit der Inversionen $\Delta N(t)$:

$$|\Delta N(t) - \Delta N(\infty)| = |\Delta N(0) - \Delta N(\infty)| \cdot e^{-t/\tau}$$

Diese Gleichung ist gültig für beide (2-2, 3-4) Inversionen. Die in Abb. 9 eingezeichneten Exponentialfunktionen wurden den Meßwerten nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate angepaßt. Die Zeitkonstanten ergaben sich zu $\tau = 35 \pm 5$ ns. Die Gesamtinversion $\Delta N_G(t)$

$$\Delta N_G(t) = \Delta N_{3-4}(t) + \Delta N_{2-2}(t)$$

ist ebenfalls eingezeichnet, sie ist nahezu konstant während der Meßzeit.

Die Meßergebnisse erlauben es festzustellen, ob zum einen die Relaxationszeit des unteren Laserniveaus tatsächlich im Subnanosekunden-Bereich liegt, und ob zum anderen die Entleerung des Grundzustands durch Rekombination wesentlich langsamer als 100 ns ist. Erweisen sich diese Vermutungen als richtig, dann zeigen die Meßkurven direkt den zeitlichen Verlauf der Relaxation im oberen Laserniveau.

Zur Abschätzung der Relaxationszeit im unteren Laserniveau übernimmt man zunächst die Vermutung einer schnellen Relaxation und überprüft, ob sie in einem Widerspruch zu den Meßergebnissen steht. Die Meßkurven ΔN_{3-4} und ΔN_{2-2} ermöglichen es, die gesamte Besetzung N_I des Grundzustands auf zwei getrennte Weisen zu berechnen, nämlich aus den sprunghaften Abnahmen der Inversionen zum Zeitpunkt der Sättigung:

$$N_{I\ 2-2} = \frac{g_u}{g_2} [\Delta N_{2-2}(-0) - \Delta N_{2-2}(+0)]$$

$$N_{I\ 3-4} = \frac{g_u}{g_u + g_3} [\Delta N_{3-4}(-0) - \Delta N_{3-4}(+0)]$$

Die Größen g_2 , g_3 und g_u geben die Entartungen der Laserniveaus an. Im einzelnen ist für das Hyperfeinniveau $F = 2$ der Entartungsfaktor $g_2 = 5$, für $F = 3$ ist $g_3 = 7$ und für den Grundzustand ist $g_u = 24$. Mit (-0) und $(+0)$ sind die Zeitpunkte unmittelbar vor und nach der Sättigung bezeichnet. Wenn die Relaxation des unteren Laserniveaus unmittelbar nach Durchgang des sättigenden Pulses abgeschlossen ist, dann geben die beiden Gleichungen denselben Wert für N_I . Wenn jedoch die Relaxation des Grundzustands die Meßpunkte noch beeinflusst, dann stößt man auf einen Widerspruch, für $N_{I\ 3-4}$ bekommt man einen höheren Wert als für $N_{I\ 2-2}$. Im vorliegenden Fall erhält man $N_{I\ 3-4} = (2.0 \pm 0.2) \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ und $N_{I\ 2-2} = (2.1 \pm 0.2) \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$. Die gute Übereinstimmung verleiht der Annahme einer schnellen Relaxation im unteren Laserniveau Gültigkeit.

Die Relaxationsprozesse lassen die Gesamtzahl der Jodatome unverändert, Rekombination dagegen führt zu einer Zunahme der Gesamtinversion N_G . Jedoch, aus der zeitlichen Konstanz von N_G kann man folgern (siehe Abb. 9), daß die Entleerung des Grundzustands auf einer Zeitskala von 100 ns unbedeutend ist.

Somit ist gezeigt worden, daß die Meßkurven direkt den zeitlichen Verlauf der Relaxation im oberen Laserniveau beschreiben. Die Messung wird weder durch die Relaxation im unteren Laserniveau noch durch die Rekombination von Jod-
atomen beeinflusst. Jetzt bleibt zu klären, durch welche Art von Stößen die Relaxation im oberen Zustand verursacht wird. Das kann aufgrund der erhaltenen Resultate mit einem vereinfachten Versuchsaufbau durchgeführt werden.

D. EXPERIMENTE ZUR UNTERSUCHUNG DER ART DER RELAXATIONSPROZESSE

Die bisherigen Resultate ermöglichen es, mit verringertem experimentellen Aufwand die Relaxation im oberen Laser-niveau weiter zu untersuchen. Dabei wurde die Relaxation in einer Serie von Messungen unter verschiedenen Bedingungen beobachtet. Auf diese Weise erhält man Kenntnis über die auftretenden Relaxationsprozesse und die zugehörigen Stoßquerschnitte.

1. Meßmethode und Aufbau

Die Relaxation erfolgt durch thermische Stöße mit Teilchen einer bestimmten Sorte. Deshalb wird die Relaxationszeit eine Abhängigkeit von der Dichte dieser Teilchen aufweisen. Eine gezielte Variation der Zusammensetzung des Lasermediums ermöglicht es, die gesuchte Abhängigkeit zu finden und den Stoßquerschnitt zu bestimmen. Weil im Laser die Änderung einer Teilchensorte zumeist auch die Änderung einer anderen Teilchensorte zur Folge hat, wird eine systematische Untersuchung des Relaxationsprozesses erschwert. Trotzdem können durch geschickte Wahl der Parameter die Relaxationsprozesse identifiziert werden.

Im Testverstärker können die Teilchendichten auf verschiedene Weisen variiert werden, z.B. durch die Änderung des Puffergasdrucks oder Jodiddrucks, durch verschieden starke Sättigung des Mediums oder Änderung der Pumprate. Je nach Teilchensorte ist der Variationsbereich der Dichten aus mannigfaltigen Gründen eingeschränkt. Dies wird im folgenden speziell für die Dichte der Jodatome im Grundzustand erläutert. Die Jodatome werden erzeugt durch den sättigenden Puls. Aus der Notwendigkeit ein meßbares Ungleichgewicht zwischen den Hyperfeinniveaus zu schaffen, resultiert ein Minimum an Jodatomen in der Größe von 1×10^{14} Teilchen pro cm^3 . Andererseits ist durch den gegebenen technischen

Aufbau die Pumpleistung des Testverstärkers beschränkt auf ca. 1×10^{15} angeregte Jodatome pro cm^3 . Ein ns-Puls auf der 3 - 4 Linie vermag maximal 45 % der Jodatome in den Grundzustand überzuführen, wodurch die obere Grenze für die Dichte der Jodatome im Grundzustand zu ca. 5×10^{14} Teilchen pro cm^3 gegeben ist.

Zur Beobachtung der Relaxation wurde ein Meßverfahren verwendet, das dem im vorigen Kapitel beschriebenen sehr ähnlich ist. Ein sättigender Puls erzeugt ein Ungleichgewicht zwischen den Besetzungen der Hyperfeinniveaus. Die Einstellung des Gleichgewichts wird jetzt nur noch auf dem 3 - 4 Übergang abgetastet. Auf das Abtasten auf dem 2 - 2 Übergang kann man verzichten, da sichergestellt ist, daß die zeitliche Zunahme der Inversion auf der 3 - 4 Linie nur auf die Relaxation im oberen Laserniveau zurückzuführen ist. Die Beschränkung auf das Abtasten nur einer Inversion vereinfacht Versuchsaufbau und Durchführung wesentlich.

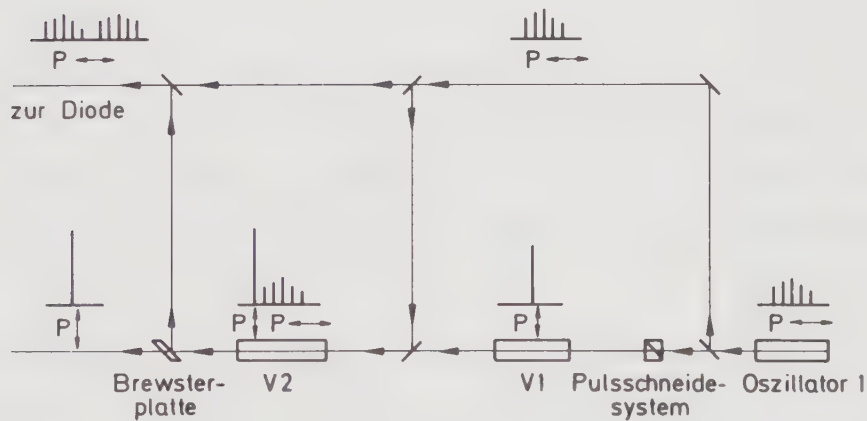


Abb. 10 Vereinfachter Versuchsaufbau zur Auffindung des Stoßpartners, der für die Relaxation verantwortlich ist.

Ein Schema des vereinfachten Versuchsaufbaus ist in Abb. 12 dargestellt. Gegenüber früher wird nur ein einziger Oszillator benötigt, von dem sowohl der sättigende Puls als auch der Tastpulszug gebildet wird. Der modengekoppelte Oszillator emittiert einen Pulszug, ein kleiner Anteil wird mit einem Strahlteiler abgezweigt. Aus dem transmittierten Pulszug wird ein Einzelpuls herausgeschnitten, der nach Durchlaufen eines Vorverstärkers den Testverstärker sättigt. Der abgezweigte Pulszug wird geeignet verzögert und folgt dann dem sättigenden Puls durch den Testverstärker. Zuvor wurde noch ein Referenzsignal abgespalten. In allen anderen Punkten blieb die experimentelle Anordnung unverändert.

2. Meßergebnisse und Diskussion

Zur Auffindung des für die Relaxation verantwortlichen Stoßpartners wurde die Dichte der verschiedenen Teilchensorten im Testverstärker variiert. Die Dichten wurden je nach Sorte auf verschiedene Weisen bestimmt. Der Puffergasdruck und der Jodiddruck wurden mit einem Manometer gemessen. Die Dichte der Radikale C_3F_7 - und die gesamte Dichte der Jodatome wurde aus der Kleinsignalverstärkung vor der Sättigung errechnet. Die Dichte der Jodatome im Grundzustand nach Durchgang des sättigenden Pulses wurde aus dem Sprung der Inversion zum Zeitpunkt $t = 0$ erhalten.

Die Zeitkonstante τ ergab sich - wie zuvor - durch Anpassen einer Exponentialfunktion an die Meßwerte. Die Meßergebnisse sind in Tabelle 3 zusammengestellt.

Mit Hilfe der Gleichung

$$1/\tau = k \cdot n_x$$

kann man die Frage nach dem (noch unbekannten) Stoßpartner beantworten. n_x ist seine Dichte und k ist die Ratenkonstante. Dazu trägt man $1/\tau$ über den Dichten der verschie-

denen Teilchensorten auf. Zwei Beispiele sind in Abb. 11 dargestellt, auf der Abszisse wurde die Dichte der Jodatome im Grundzustand (a), bzw. die Dichte der Argonatome (b) aufgetragen. Solche Darstellungen wurden für alle im Lasermedium vorkommenden Teilchen aufgestellt. Nur in einem Fall zeigt sich eine lineare Abhängigkeit und man identifiziert als "richtigen" Stoßpartner das Jodatome im Grundzustand. Dieses Ergebnis steht mit den Aussagen der Stoßtheorie in Einklang: der dominante Relaxationsprozeß ist der resonante Energieübertrag.

Ar	mittlere Teilchendichten x 10 ¹⁶ cm ⁻³				Zeitkonstante ns
	C ₃ F ₇ I	(I+I [*])	I [*]	I	
500	300	10,8	7,1	3,7	23 ± 3
700	300	8,3	6,0	2,3	25 ± 4
1100	320	9,6	7,4	2,2	27 ± 4
700	320	6,6	4,4	2,0	35 ± 5
700*	320	6,6	4,5	2,1	35 ± 5
1000	70	5,0	3,2	1,8	35 ± 5
1400	320	5,8	4,5	1,3	38 ± 10
1400*	320	5,8	4,5	1,3	38 ± 10
1800	300	7,6	6,4	1,2	44 ± 10
2200	300	6,7	5,9	0,8	53 ± 11
650	300	4,7	3,6	1,1	54 ± 11

Tab. 3 Zusammenstellung der Meßergebnisse

Die mit * gekennzeichneten Messungen wurden auf der 2 - 2 Linie durchgeführt. Die Fehler der Teilchendichten sind kleiner als 10 %.

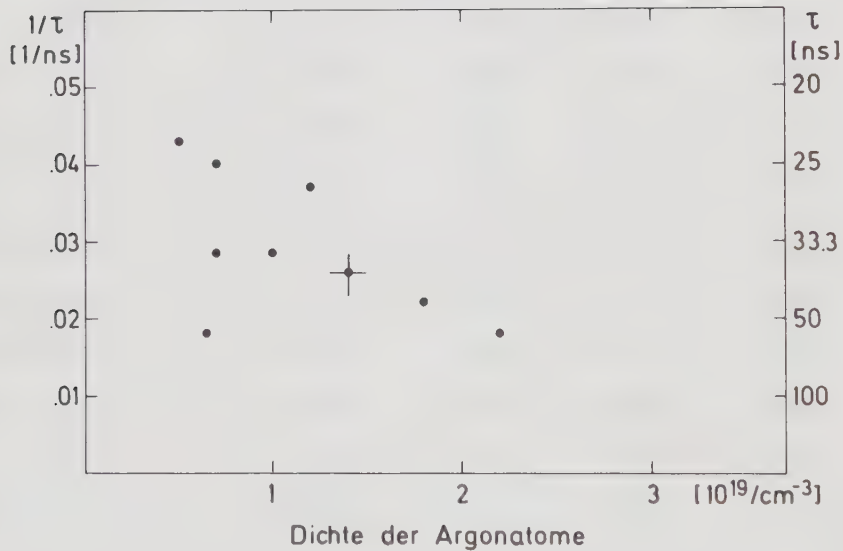
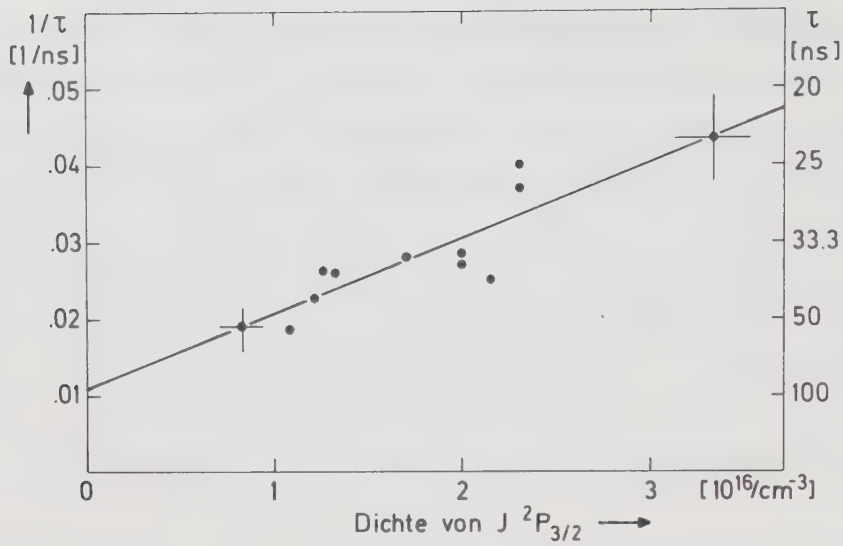


Abb. 11 Gemessene Zeitkonstanten der Relaxation als Funktion der Jodatome im Grundzustand (a), bzw. der Argonatome (b). Der Verlauf der Meßwerte zeigt, daß die Hyperfeinrelaxation im oberen Laserniveau im wesentlichen durch Stöße mit Jod-Atomen hervorgerufen wird; Relaxation durch Stöße mit anderen Teilchen, wie z.B. Argonatomen war experimentell nicht direkt nachweisbar.

Die Reaktionskonstante erhält man aus der Steigung der angepaßten Geraden, $k = (1.05 \pm 0.25) \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$. Damit ergeben sich für gesättigte Jodlaserverstärker Relaxationszeiten in der Größe von 20 bis 100 ns.

Für einen Vergleich zwischen Theorie und Experiment wird der Stoßquerschnitt mit der Beziehung

$$\sigma = k/v$$

abgeschätzt, wobei v die mittlere thermische Relativgeschwindigkeit ist. Der experimentell ermittelte Stoßquerschnitt ergibt sich zu $\sigma_{\text{exp}} = (3.5 \pm 0.8) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$. Dieser Wert unterscheidet sich etwas von der theoretischen Abschätzung, die $\sigma_{\text{th}} = 5 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ ergab. Der Unterschied der Werte ist angesichts der Näherungen, die bei der Abschätzung getroffen wurden, nicht gravierend.

Einen Hinweis auf einen weiteren Stoßpartner für die Relaxation gibt die Tatsache, daß selbst bei verschwindender Dichte der Jodatome im Grundzustand ($n_I = 0$) die Relaxationszeit ca. 100 ns beträgt. Aufgrund der theoretischen Überlegungen wird man vermuten, daß die Austauschwechselwirkung diesen Beitrag liefert. Diese Wechselwirkung tritt beim Stoß von I^* mit I^* und mit C_3F_7^- auf. Unter typischen Bedingungen beträgt die Lebensdauer der Radikale im Lasermedium ca. 15 μs . Da die Relaxationsmessungen ungefähr 10 μs nach Beginn der Photodissoziation stattfinden, wird ein beträchtlicher Anteil der Radikale dimerisiert sein. Man kann annehmen, daß die angeregten Jodatome den Hauptbeitrag zur Relaxation durch Austauschwechselwirkung abgeben. Mit der Gleichung

$$1/\tau = n v \sigma$$

läßt sich der Stoßquerschnitt abschätzen. Setzt man für die Dichte der angeregten Jodatome $n_{I^*} \approx 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ an, so erhält man eine Reaktionskonstante von $k \approx 2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$

und für den Stoßquerschnitt $\sigma \approx 6 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$. Der Fehler dürfte in der Größe von 30 % liegen. Aufgrund des Beitrags der Radikale sind wohl die tatsächlichen Werte etwas kleiner. Trotzdem ist die Übereinstimmung des experimentellen Ergebnisses mit der theoretischen Abschätzung von

$$\sigma \approx 6 \times 10^{-15} \text{ cm}^2 \text{ ausgezeichnet.}$$

Abschließend soll noch darauf hingewiesen werden, daß das Verfahren, mit dem die Reaktionskonstante k für den resonanten Energieübertrag ermittelt wurde, die inhomogene Verteilung der Teilchen über die Länge des Testverstärkers unberücksichtigt läßt. Durch das Anwachsen des sättigenden Pulses erfährt das Endstück des Verstärkers eine stärkere Sättigung als der Anfang. Das hat zur Folge, daß z.B. die Dichte n_I der Jodatome im Grundzustand über die Länge x zunimmt.

Anhand der Beziehung

$$1/\tau = k \cdot n_I(x)$$

sieht man sofort, daß die Relaxationszeit ortsabhängig ist, und die Beschreibung des Relaxationsverlaufs durch eine Zeitkonstante, bzw. durch eine Exponentialfunktion nur angenähert gilt. Die Funktion, die die zeitliche Entwicklung der Kleinsignalverstärkung unter Berücksichtigung der Inhomogenität beschreibt, wird im Anhang II abgeleitet. Eine numerische Anpassung dieser Funktion an die Meßwerte ergab, daß der Fehler, der bei dem einfachen Auswertungsverfahren entsteht, klein ist. Der numerische Wert für die Reaktionskonstante des resonanten Energieaustausches beträgt $k = (1,01 \pm 0,25) \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$.

Ähnliche Werte für die Reaktionskonstante sind von anderen Autoren veröffentlicht worden. Belousova et al. haben das Emissionsverhalten von Jodlaseroszillatoren betrachtet. Aus

diesen Messungen, die keine direkte Beobachtung der Relaxation gestatten, haben sie auf eine Konstante von $k = 1,08 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ (ohne Fehlerangabe) geschlossen. Während der Anfertigung dieser Arbeit haben V.A. Katulin et al. die Relaxation mit einer Meßmethode beobachtet, die der hier verwendeten sehr ähnlich ist. Diese Messungen ermöglichen eine direkte Beobachtung der Relaxation, sie gestatten es aber nicht, eine Verfälschung der Ergebnisse durch Rekombination oder Grundzustandsrelaxation zu erkennen. Von V.A. Katulin wurde ein Wert von $k = (0.96 \pm 0.4) \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ erhalten. In beiden zitierten Arbeiten wurde der für den vorherrschenden Relaxationsprozeß verantwortliche Stoßpartner jedoch nicht identifiziert. Die angegebenen Werte basieren auf der Vermutung, daß die Relaxation durch resonanten Energieübertrag verursacht wird. Der Einfluß der Austauschwechselwirkung wurde nicht berücksichtigt.

In der vorliegenden Arbeit wurde durch sorgfältigen Ausschluß möglicher verfälschender Effekte der resonante Energieaustausch als der dominante Relaxationsprozeß nachgewiesen. Darüber hinaus zeigen die Experimente, daß noch ein weiterer Prozeß, die Spinaustausch-Wechselwirkung, zur Relaxation beiträgt. Die Kenntnisse dieser Prozesse und ihrer Ratenkonstanten erlaubt es, sich ein gutes Modell vom Ablauf der Hyperfeinrelaxation zu verschaffen. Damit besitzt man eine sichere Grundlage, auf der mögliche Vorschläge zur Optimierung des Jodlasers diskutiert werden können.

E. SCHLUSSFOLGERUNGEN

1. Die Hyperfeinrelaxation im Jodlaser

Die experimentellen Ergebnisse vermitteln ein gutes Bild vom Ablauf der Hyperfeinrelaxation im Jodlaser. Die Experimente ergaben, daß die Relaxation im oberen Laserniveau im wesentlichen durch zwei Stoßprozesse bewirkt wird.

Der eine Stoßprozeß ist der resonante Energieübertrag zwischen einem Jodatome im oberen Laserzustand und einem zweiten Jodatome im Grundzustand. Das erste Atom, das sich anfangs in einem bestimmten Hyperfeinniveau befindet, verliert seine Anregungsenergie an das zweite Atom. Dieses nimmt die Energie auf und geht in ein beliebiges Hyperfeinniveau des oberen Laserzustands über, auf diese Weise werden die Besetzungen der Hyperfeinniveaus gemischt. Dieser Prozeß ist dann vorherrschend, wenn die Dichte der Jodatome im Grundzustand hoch ist. In gesättigten Jodlaserverstärkern z. B. kann man typische Relaxationszeiten von 30 ns erwarten.

Der zweite Prozeß ist vermutlich die Spinaustausch-Wechselwirkung, sie tritt z.B. beim Stoß zweier angeregter Jodatome auf. Während eines solchen Stoßes vermögen die Atome Valenzelektronen mit verschiedener Spinorientierung auszutauschen. Nach dem Stoß, bzw. dem Austausch, erfolgt eine Neuorientierung der Drehimpulse zu einem Gesamtdrehimpuls, der dann i.a. einen anderen Hyperfeinzustand darstellt als vor dem Stoß. Das Mischen der Besetzungen zwischen den Hyperfeinniveaus durch die Austauschwechselwirkung ist dann dominant, wenn die Dichte der angeregten Jodatome deutlich die Dichte der Jodatome im Grundzustand übertrifft. Dieser

Fall tritt z.B. in ungesättigten Jodlaserverstärkern auf, die typischen Zeitkonstanten liegen in der Größe von 100 ns.

Einige theoretische und experimentelle Daten zu diesen beiden Relaxationsprozessen sind in Tabelle 4 zusammengestellt. Bemerkenswert ist die gute Übereinstimmung von Theorie und Experiment.

Wechselwirkungs- prozeß	Resonanter Energieübertrag	Spin-Austausch- Wechselwirkung
	$I^* + I$	$I^* + I^*$
theoretischer Stoßquerschnitt	$5 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$	$6 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$
experimenteller Stoßquerschnitt	$(3.5 \pm .8) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$	$(6 \pm 2) \times 10^{-15} \text{ cm}^2$
experimentelle Reaktionskonst.	$(1.05 \pm .25) \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$	$(2.0 \pm .6) \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$
Relaxationszeit bei typischen Druckverhältnissen im Jodlaser	30 ns	100 ns

Tab. 4 Zusammenstellung einiger theoretischer und experimenteller Ergebnisse für die Relaxation im oberen Laserniveau.

Im unteren Laserniveau, so zeigen die Experimente, ist die Relaxation für Jodlaserverhältnisse schneller als ca. eine Nanosekunde. Die Zeitkonstante kann mit der verwendeten Meßmethode nicht aufgelöst werden. Die Größe der Zeitkonstante läßt nur den Schluß zu, daß die Hyperfeinrelaxation im unteren Laserniveau durch die van-der-Waals-Wechselwirkung, also im wesentlichen durch Stöße mit Edelgasatomen, erfolgt. Denn andere in Frage kommende Relaxationsprozesse, wie resonanter Energieaustausch oder Spinaustausch-Wechselwirkung, besitzen unter typischen Bedingungen im Jodlaser Zeitkonstanten von einigen zehn Nanosekunden.

2. Folgerungen für den Bau großer Jodlaser

Bei der üblichen Betriebsweise von Jodlaserverstärkern - Einfachdurchgang und Einlinienpuls - vermag ein Puls von 1 ns Dauer nur dem Hyperfeinniveau $F = 3$ Energie zu entziehen. Dabei kann die Energieausbeute höchstens 45 % der gesamten gespeicherten Energie erreichen.

Die Messungen zeigen jedoch, daß der Extraktionsgrad erhöht werden kann. Eine mögliche Methode ist der Mehrfachdurchgang durch einen Verstärker. Bei diesem Verfahren durchläuft ein Puls einen Verstärker mehrmals, wobei man zwischen den einzelnen Durchgängen Zeitspannen in der Größe der Relaxationszeit vergehen läßt ($30 \text{ ns} \hat{=} 9 \text{ m Lichtweg}$). Durch Relaxation wird das entleerte Niveau wieder aufgefüllt, der Puls gewinnt bei jedem Durchgang an Energie. Der Erfolg dieser Methode kann durch eine Computersimulation des Jodlasers in guter Genauigkeit vorausberechnet werden. In der Rechnung gehen die in dieser Arbeit ermittelten Reaktionskonstanten ein. Die Simulation läßt bereits bei zweifachem Durchgang einen Extraktionsgrad in einer Höhe von 55 % bis 60 % erwarten. Dies kommt dem theoretischen Grenzwert von 66 % maximal extrahierbarer Energie sehr nahe.

F. ANHANG I

Ein abstimmbarer Jodlaser-Oszillator

Der beschriebene Laser vermag entweder auf dem 3 - 4 Übergang oder dem 2 - 2 Übergang zu emittieren. Diese Eigenschaft wird erreicht durch eine geschickte Kombination von Druckverbreiterung und Zeemanaufspaltung der Linien.

Das aktive Medium des Lasers befindet sich in einem transversalen Magnetfeld. Bei abgeschaltetem Feld findet Laseremission auf der 3 - 4 Linie statt. Bei einem angelegten Feld spalten die Linien auf, wobei die Aufspaltung der 3 - 4 Linie stärker ist als die der 2 - 2 Linie. Wählt man nun Magnetfeld und Druckverbreiterung so, daß sich die Zeemanlinien des 2 - 2 Übergangs noch gut überlappen, die des 3 - 4 Übergangs aber nur schwach, dann kann die 2 - 2 Linie zur prominentesten Linie werden /22/. Abbildung 12 zeigt das berechnete Spektrum bei einem Jodiddruck von 70 mbar einmal ohne Feld und bei einem Feld von ca. 900 G. Mit Fabry-Perot-Aufnahmen wurde verifiziert, daß der Laser bei eingeschaltetem Magnetfeld tatsächlich auf der 2 - 2 Linie anschwingt. Die gemessene Differenz $\Delta\nu = (0,45 \pm 0,01) \text{ cm}^{-1}$ zwischen den Emissionslinien entspricht dem Abstand von 3 - 4 und 2 - 2 Linie, nach Zuev et al. beträgt er $\Delta\nu = (0,453 \pm 0,003) \text{ cm}^{-1}$.

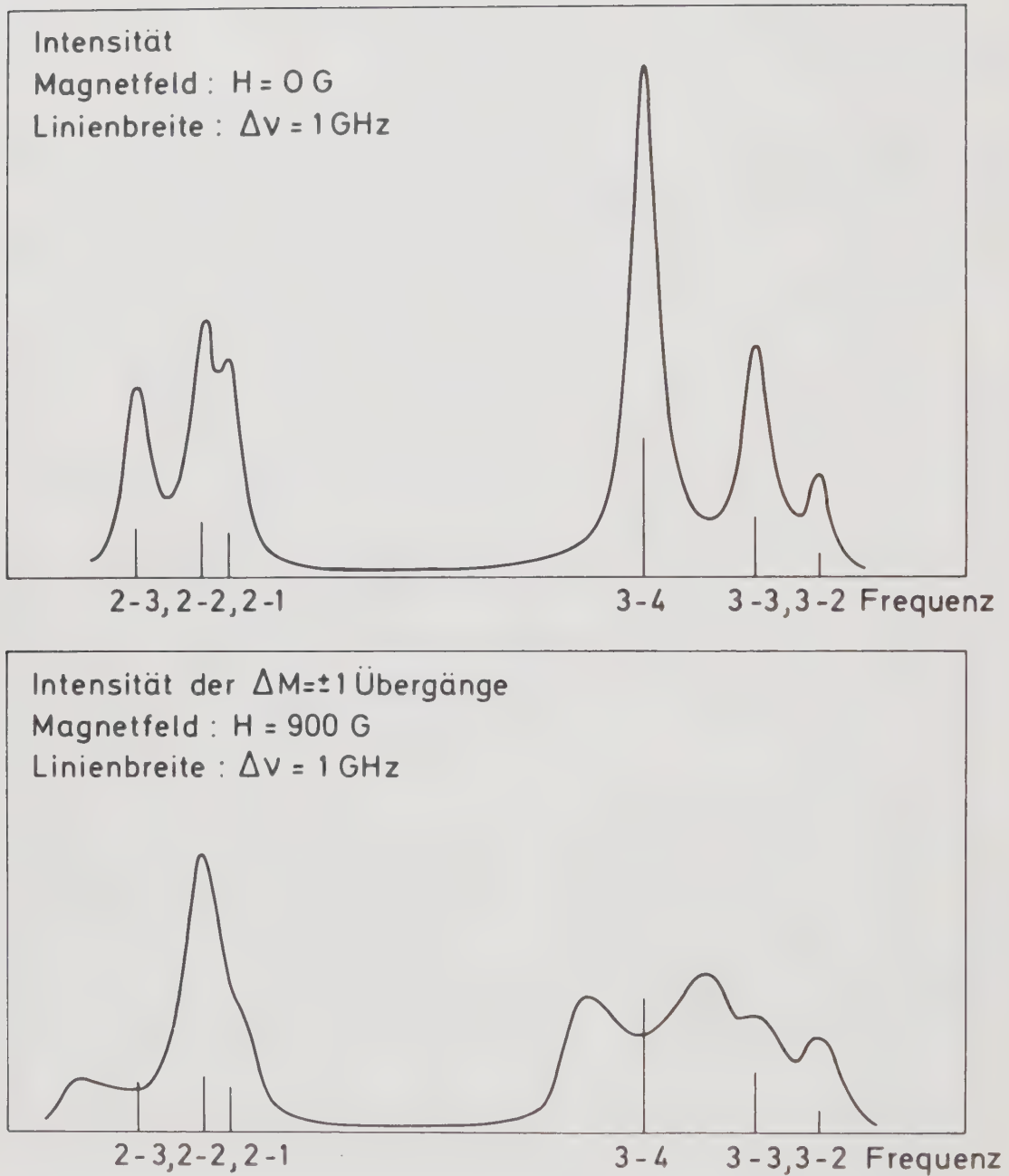


Abb. 12 Berechnetes Spektrum des Jodlasers
a) ohne Magnetfeld
b) für ein Magnetfeld von 900 G

G. ANHANG II

1. Relaxationsverlauf bei inhomogener Verteilung

In die folgende Bestimmung der Ratenkonstanten wird eine inhomogene Verteilung der Teilchen über die Länge des Testverstärkers mit einbezogen. Es wird eine Beziehung abgeleitet, die die Kleinsignalverstärkung als Funktion der Zeit beschreibt. Kleinsignalverstärkung deshalb, weil das die ursprüngliche Meßgröße ist. Durch Anpassen dieser Funktion an die Meßwerte erhält man die Reaktionskonstante. Die folgende Rechnung wird nur für die Kleinsignalverstärkung auf der 3 - 4 Linie dargestellt.

Ausgangspunkt ist die Differentialgleichung, die den Relaxationsprozeß am Ort x und zur Zeit t beschreibt, $n(x, t)$ ist die Besetzung / cm^{-3} / des Hyperfeinniveaus $F = 3$:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = - [k n_I(x) + 1/\tau_0] \cdot [n(x, t) - n(x, \infty)] \quad (1)$$

dabei ist $n(x, \infty)$ die Gleichgewichtsbesetzung, $n_I(x)$ die Besetzung des Grundzustands, mit $1/\tau_0$ werden andere Relaxationsprozesse als resonanter Energieübertrag pauschal berücksichtigt. Die Integration über die Zeit kann ausgeführt werden; zum Zeitpunkt $t = 0$ durchläuft der sättigende Puls den Verstärker:

$$n(x, t) = [n(x, +0) - n(x, \infty)] \cdot e^{-(k n_I(x) + 1/\tau_0) \cdot t} + n(x, \infty) \quad (2)$$

$n(x, +0)$ ist die Besetzung unmittelbar nach der Sättigung, sie ist im Vergleich zur Besetzung $n(-0)$ vor der Sättigung vermindert, und zwar um die Besetzung des Grundzustands $n_I(x)$. Aufgrund der Pumpgeometrie kann man $n(-0)$ als konstant über die aktive Länge des Verstärkers ansehen:

$$n(x, 0) = n(-0) - n_I(x) \quad (3)$$

Da 5/12 der extrahierten Energie in das Niveau $F = 3$ relaxieren, kann man für die Gleichgewichtsbesetzung $n(x, \infty)$ ansetzen

$$n(x, \infty) = n(-0) - \frac{7}{12} n_I(x) \quad (3)$$

Der Faktor 5/12, bzw. 7/12 ergibt sich wegen der Entartungen der Hyperfeinniveaus. Einsetzen von (3) und (2) in (1) ergibt:

$$n(x, t) = n(-0) - \frac{7}{12} n_I(x) - \frac{5}{12} n_I(x) \cdot e^{-(k n_I(x) + \frac{1}{T_0}) \cdot t}$$

Durch Subtraktion der Besetzung des Grundzustands $n_I(x)$ entsprechend dem statistischen Gewicht von 7/24 erhält man die Inversion $\Delta n(x, t)$ auf dem 3 - 4 Übergang:

$$\Delta n(x, t) = n(-0) - \frac{31}{24} n_I(x) - \frac{5}{12} n_I(x) \cdot e^{-(k n_I(x) + \frac{1}{T_0}) t} \quad (4)$$

Somit ist die Ortsabhängigkeit der Inversion auf die Verteilung der Grundzustandsbesetzung zurückgeführt.

Die Kleinsignalverstärkung V_k erhält man durch Integration über die Länge l des aktiven Mediums:

$$\begin{aligned} V(t) &= \exp \sigma \int_0^l \Delta n(x, t) dx \\ &= \exp \sigma \int_0^l \left[n(-0) - \frac{31}{24} n_I(x) - \frac{5}{12} n_I(x) \cdot e^{-(k n_I(x) + \frac{1}{T_0}) t} \right] dx \quad (5) \end{aligned}$$

In diesem Fall ist σ der Wirkungsquerschnitt für stimulierte Emission.

Um die Integration ausführen zu können, wird die ortsabhängige Besetzung des Grundzustands mit den Ratengleichungen von Frantz und Nodwick /21/ ermittelt:

$$n_I(x) = \frac{\Delta n(-0)}{b} \left[1 - \frac{1}{1 + (e^{b \sigma N_{EIN}} - 1) \cdot e^{\sigma \Delta n(-0) \cdot x}} \right] \quad (6)$$

dabei ist N_{EIN} die Energiedichte $/cm^{-2}/$ des sättigenden Pulses am Eingang des Verstärkers, b ist $1/(1 + 7/24)$. Nach Einsetzen von (6) in (5) kann man die Integration ausführen. Sie führt auf eine Integralexponentialfunktion, die nur durch eine unendliche Summe ausgedrückt werden kann.

Die Gleichung für $V_k(t)$ enthält im wesentlichen nur gemessene Verstärkungen, wenn man die folgenden Substitutionen einführt:

$$\sigma n(-0) \cdot l = \ln V(-0)$$

$$\sigma \int_0^l n_I(x) dx = \frac{24}{21} \ln \frac{V(-0)}{V(\infty)}$$

Die Kleinsignalverstärkung vor der Sättigung ist mit $V_k(-0)$, die Gleichgewichtsverstärkung mit $V_k(\infty)$ bezeichnet.

Damit erhält man dann:

$$V(t) = V(\infty) \cdot \exp \left\{ - \left[0,32 \cdot e^{-[0,78 \frac{kt}{\sigma l} \ln V(-0) + \frac{t}{T_0}]} \cdot (0,89 \ln \frac{V(-0)}{V(\infty)} + I) \right] \right\}$$

Die Größe I ist der Term, der durch die inhomogene Verteilung hervorgerufen wird:

$$I = \sum_{n=1}^{\infty} \left[0,62 \frac{kt}{\sigma l} \cdot \ln V(-0) \right]^n \cdot \frac{1}{n \cdot n!} \cdot \left[1 - e^{-0,89 n \cdot \ln \frac{V(-0)}{V(\infty)}} \right]$$

Diese Kurve $V(t)$ wurde den Meßwerten numerisch angepaßt, wobei k und $V(\infty)$ so gewählt wurden, daß die Fehlerquadrate minimal sind. $V(\infty)$ wurde ebenfalls angepaßt, da diese Größe kein direkter Meßwert ist. Bei der Rechnung brauchten maximal zehn Summenglieder berücksichtigt zu werden, da die Glieder durch den Faktor $1/(n \times n!)$ schnell abnehmen.

Abbildung 13 zeigt ein Rechenbeispiel, aus zwölf verschiedenen Messungen ergab sich eine mittlere Reaktionskonstante von $k = (1,01 \pm 0,25) \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$.

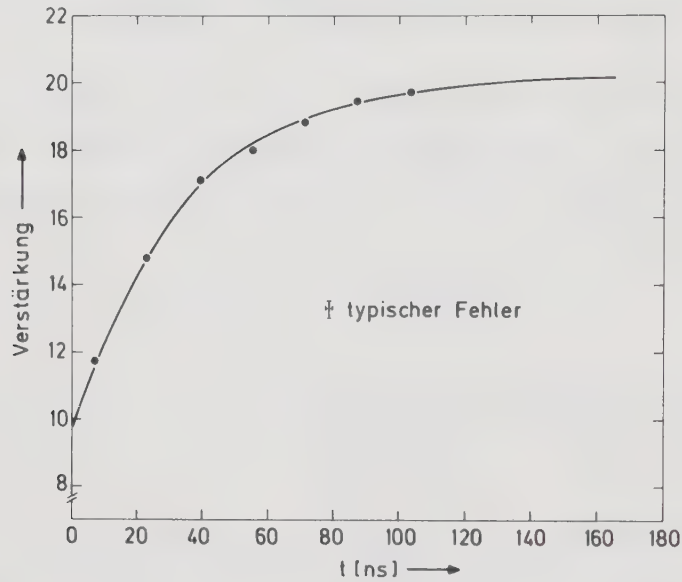


Abb. 13 Numerische Anpassung der Kleinsignalverstärkung $V_k(t)$ an eine Meßreihe. Jeder Meßpunkt besteht aus ca. 7 Meßwerten.

H. LITERATURVERZEICHNIS

- / 1/ V.S. Zuev, V.A. Katulin, V. Yu. Nosach und O. Yu Nosach
Sov. Physics JETP 35, 870 (1972)
- / 2/ E.A. Yukov
Sov. J. Quant. Electron. 3, 117 (1973)
- / 3/ T. Donohue, J.R. Wiesenfeld
J. Chem. Phys. 63, 3130 (1975)
- / 4/ S.V. Kuznetsova, A.J. Maslov
Sov. J. Quant. Electr. 3, 468 (1974)
- / 5/ F.J. Comes, S. Piontek
Chem. Phys. Lett. 42, 558 (1976)
- / 6/ J.V. Kasper and C.C. Pimentel
Appl. Phys. Lett. 5, 231 (1964)
- / 7/ S.V. Kuznetsova, A.J. Maslov
Sov. J. Quant. Electr. 8, 906 (1978)
- / 8/ G. Brederlow, K.J. Witte, E. Fill, K. Hohla und R. Volk
IEEE J. Quant. Electron. QE-12, 152 (1976)
- / 9/ G. Brederlow, K. Hohla und K.J. Witte
IPP Rep. IV/74, 1974
- /10/ A. Omont
J. Physique 26, 26 (1965)
- /11/ F.A. Franz und J.R. Franz
Phys. Rev. 148, 82 (1966)

- /12/ A. Gallagher
Phys. Rev. 157, 68 (1967)

- /13/ F.A. Franz, G. Leutart, R.T. Shuey
Hel. Phys. Acta 40, 778 (1967)

- /14/ H.M. Gibbs, G.G. Churchill, T.R. Marshall, J.F. Papp
and F.A. Franz
Phys. Rev. Lett. 25, 263 (1970)

- /15/ J.J. Sobel'man
Introduction to the Theory of Atomic Spectra,
Pergamon Press,
Oxford (1963)

- /16/ B.M. Smirnov, M.J. Chibisov
Sov. Phys. JETP 21, 624 (1965)

- /17/ D.R. Bates, A. Damgaard
Phil. Trans. Roy. Soc. London 842, 101 (1949)

- /18/ W. Fuß und K. Hohla
Z. Naturf. 31a, 569 (1976)

- /19/ J.M. Belousova, B.D. Bobrov, V.M. Kiselev,
V.M. Kurzenkov,
P.J. Krepostnov
Zh. Eksp. Teor. Fiz. 65, 524 (1973)

- /20/ V.A. Katulin, V. Yu. Nosach, A.L. Petrov

Sov. J. Quantum Electron. 9, 169 (1979)

- /21/ L.M. Frantz, J.S. Nodvik
J. Appl. Phys. 34, 2346 (1963)

- /22/ Witte (to be published IEEE)

Lebenslauf

Name: Thieme, Hans Werner Horst

Familienstand: verheiratet seit 11. April 1979

Eltern: Thieme, Horst
selbständiger Kaufmann
Thieme, Anna, geb. Hildersperger
Hausfrau

Geburtstag und -ort: 10. April 1951 in Beilngries

Schulbesuch: 1957 - 1961 Volksschule Olching
1961 - 1970 math.-naturwissenschaft-
liches Gymnasium Fürstenfeldbruck
1970 Abitur

Wehrdienst: 1970 - 1971 Wehrpflicht

Ausbildung: 1971 - 1977 Physikstudium an der
Technischen Universität München
1977 Diplom für Physik
1977 - 1980 Doktorarbeit in der Projekt-
gruppe für Laserforschung

Arbeitsverhältnisse: 1973 - 1974 ca. einjährige Beschäftigung
bei der Firma Kristalloptik und Laserbau
GmbH, Fürstenfeldbruck
Seit Oktober 1980 Angestellter im
Holographielabor der Firma M.A.N.,
Karlsfeld

München, 20. Mai 1981

Werner Thieme

